Kapitza-Widerstand zwischen flüssigem Helium und Blei, Kupfer, Aluminium und Nickel im Temperaturbereich von 0,3 bis 1,4 K

DISSERTATION

zur Erlangung der Doktorwürde
des Fachbereichs Physik
der Freien Universität Berlin

vorgelegt von

Hans-Dietrich Denner

aus Berlin

1976

Kapitza-Widerstand zwischen flüssigem Helium und Blei, Kupfer, Aluminium und Nickel im Temperaturbereich von 0,3 bis 1,4 K

DISSERTATION

zur Erlangung der Doktorwürde
des Fachbereichs Physik
der Freien Universität Berlin

vorgelegt von

Hans-Dietrich Denner

aus Berlin

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

1. Referent: Priv.-Doz. Dr.-Ing. G. Klipping
2. Referent: Prof. Dr. E. Klein

Tag der mündlichen Prüfung: 12.10.1976
Tag der Promotion:

Inhalt

		Seite
1	Zusammenfassung	1
2	Einleitung	4
3	Theoretische Grundlagen: Phonon Radiation Limit und Acoustic Mismatch Theorie	7
4	Apparaturbeschreibung	14
	4.1 Meßzelle	14
	4.2 Der ^{3}He-Kryostat	17
	4.3 Temperatureinstellung im ^{3}He-Kryostaten	20
5	Präparierung der Metallproben	24
6	Meßverfahren	28
7	Meßergebnisse	32
	7.1 Metall/He II	32
	7.1.1 Kupfer	32
	7.1.2 Blei	38
	7.1.3 Aluminium	39
	7.1.4 Nickel	43
	7.2 Metall/^{3}He	45
	7.3 Abhängigkeit des Temperatursprunges an der Grenzfläche von der Wärmestromdichte	50
8	Fehlerbetrachtung	53
9	Diskussion der Ergebnisse	58
10	Vergleich mit der Theorie	72
11	Literaturverzeichnis	88

1 Zusammenfassung

Es wurde der thermische Widerstand (Kapitza-Widerstand) an der Grenzfläche zwischen HeII und den Metallen Blei, Kupfer, Aluminium und Nickel sowie zwischen flüssigem ^{3}He und Blei, Aluminium und Nickel im Temperaturbereich von 0,35 bis 1,4 K untersucht.

Für die Aufnahme durchgehender Meßreihen, d. h. ohne zwischenzeitliche Aufwärmung der Probe, ließ sich aufgrund der zu erwartenden thermischen Gleichgewichtseinstellzeiten (ca. 1 h/Zustand) ein Kryostat mit diskontinuierlichem Betrieb nicht einsetzen. Es wurde daher zur Erzeugung der o. a. Temperaturen ein ^{3}He-Kryostat entwickelt, der sowohl einen geschlossenen ^{3}He-Kreislauf als auch eine kontinuierlich arbeitende, mit HeII gekühlte Kondensationsstufe hat. Damit ist der Kryostat für den Dauerbetrieb, d. h. für Langzeitexperimente geeignet, die im vorliegenden Fall etwa eine Woche pro Meßreihe beanspruchten.

Als Proben wurden hochreine, getemperte Metalle verwendet, deren Oberflächen elektrolytisch gereinigt worden sind. Die Oberflächenstruktur wurde mit einem Auflichtmikroskop und mit einem Rasterelektronenmikroskop untersucht. Die Rauhigkeiten wurden darüberhinaus mit einem Lichtschnittmikroskop festgestellt.

Der Vergleich mit Ergebnissen anderer Autoren zeigte, daß die gewählte Probenbehandlung zu reproduzierbaren Kapitza-Widerständen im hier untersuchten Temperaturbereich führt.

Messungen am schon vielfach untersuchten System Cu/HeII dienten dazu, die Genauigkeit, Reproduzierbarkeit und die grundsätzliche Übereinstimmung der ermittelten Meßwerte für den Kapitza-Widerstand mit denen anderer Autoren festzustellen.

Durch Variationen der Wärmestromdichte von 1 $\mu W/cm^2$ bis $2 \cdot 10^3$ $\mu W/cm^2$ bei konstanter Temperatur wurde gezeigt, daß die geforderte Unabhängigkeit des Kapitza-Widerstandes von der Wärmestromdichte bei der benutzten Meßanordnung gegeben ist.

Die Meßergebnisse für den Kapitza-Widerstand R_K bei den verschiedenen Metallen lassen sich durch Beziehungen der Form $R_K = AT^{-B}$ annähern. Die Temperaturabhängigkeit variierte von $T^{-3,1}$ bis $T^{-4,6}$ und der Faktor A von 5 bis 37 K^{B+1} cm^2 W^{-1}. Dabei ist ein systematischer, linearer Zusammenhang mit dem Festkörperparameter Schallgeschwindigkeit /Dichte ersichtlich.

Eine Abhängigkeit von der jeweiligen makroskopischen Rauhigkeit der Oberflächen geht aus den Ergebnissen nicht hervor.

Im Falle des Aluminiums konnte beim Durchlaufen der Übergangstemperatur T_c keine Änderung der Temperaturabhängigkeit von R_K beobachtet werden. Dies bestätigt die Vorstellung, daß die Dichte der Leitungselektronen keinen Einfluß auf die Wärmeübertragung hat.

Die Ergebnisse für Nickel unterstützen ferner die Folgerung, daß bei Temperaturen $T > 1$ K der Einfluß von Deformationen bei normalleitenden Metallen vernachlässigbar ist.

Die Messungen an flüssigem ^{3}He wurden mit dem gleichen Meßsystem jeweils unmittelbar im Anschluß an die Messungen mit HeII durchgeführt. Eine die Fehlergrenzen übersteigende Differenz zwischen den ^{3}He- und HeII-Daten läßt sich nicht feststellen.

Die experimentellen Ergebnisse ordnen sich zwischen einem oberen Grenzwert, den das Acoustic-Mismatch Modell ergibt, und einem unteren Grenzwert, dem Phonon-Radiation-Limit,

ein, wobei sich die Werte mit zunehmender Temperatur der unteren Grenze annähern. Es wird gezeigt, daß ein Transportmechanismus für die Energieübertragung, wie er sich durch die Anregung einzelner Heliumatome der adsorbierten, festeren Heliumschicht ergibt, den Verlauf der experimentellen Werte in der richtigen Weise beschreibt. Die auftretenden Parameter haben dabei physikalisch realistische Werte.

Teile dieser Arbeit wurden auf der SIXTH INTERNATIONAL CRYOGENIC ENGINEERING CONFERENCE in Grenoble (Mai 1976) vorgetragen.

2 Einleitung

Fließt ein Wärmestrom durch die Grenzfläche zwischen zwei verschiedenen homogenen Medien, so tritt dort ein Temperatursprung auf. Dies wurde erstmalig 1941 von Kapitza [1] bei Untersuchungen von Festkörpern in superfluidem Helium entdeckt. Dieser Effekt wird daher nach ihm benannt. Wenn der Temperatursprung klein ist, also $\Delta T \ll T$, ist er der Wärmestromdichte $\frac{\dot{Q}}{A}$ proportional. Die Wärmeleitfähigkeit h_K bzw. der Wärmewiderstand R_K an der Grenzfläche ist definiert durch

$$h_K = R_K^{-1} = \dot{Q}/A\Delta T \ .$$

Die grundlegenden theoretischen Erklärungen des Kapitza-Widerstandes von Khalatnikov [2] und von Mazo und Onsager [3] gehen davon aus, daß der Wärmeaustausch zwischen den Medien durch akustische Phononen geschieht, die aber aufgrund der verschiedenen akustischen Eigenschaften der beiden Medien zum größten Teil an der Grenzfläche reflektiert werden (Acoustic Mismatch). Die maximal mögliche Wärmeübertragung ist gegeben, wenn keine Reflexion angenommen wird (Phonon Radiation Limit).

Der Vergleich mit dem Experiment zeigt, daß die gemessenen Kapitza-Widerstände ein bis zwei Größenordnungen kleiner sind als die nach der Acoustic-Mismatch-Theorie berechneten (siehe die Review-Artikel [4, 5, 6]). Auch neuere modifizierte Theorien können diese Diskrepanz nicht beseitigen, außer bei sehr tiefen Temperaturen ($T < 0{,}1$ K) [7]. Man folgert, daß mit zunehmender Temperatur zusätzliche Mechanismen für den Energietransport wirksam werden, die eine entsprechende Reduzierung des Kapitza-Widerstandes bewirken. Ein derartiger Mechanismus ist z. B. die Anregung adsorbierter Partikel auf der Oberfläche [8, 9].

Die meisten experimentellen Untersuchungen des Kapitza-Widerstandes sind im Temperaturbereich zwischen 1,2 und 2,2 K an Festkörpern in HeII durchgeführt worden. Die gemessene Temperaturabhängigkeit von R_K variiert zwischen $T^{-1,5}$ und $T^{-4,7}$, während man aus dem Acoustic-Mismatch-Modell T^{-3} erhält. Der Zustand der Flüssigkeit sowie die elastischen Konstanten des Festkörpers wirken sich schwächer aus als theoretisch zu erwarten wäre. Dagegen haben Gitterfehler, Verunreinigungen und Oxidschichten einen wesentlichen Einfluß auf Größe und Temperaturabhängigkeit des Wärmewiderstandes. Daraus erklären sich die oft widersprüchlichen experimentellen Ergebnisse für ein und dasselbe System, wie z. B. Cu/HeII. All diese Feststellungen gelten auch für andere Systeme, wie Festkörper/^{3}He flüssig oder Kombinationen verschiedener Festkörper. Die fehlende Beschreibung der wesentlichen Oberflächenparameter ermöglicht daher nur bedingt einen Vergleich mit den theoretischen Ergebnissen.

Weitere experimentelle Untersuchungen, insbesondere auch bei Temperaturen unterhalb 1 K, sind daher zum Verständnis des Kapitza-Widerstandes erforderlich. Derartige Untersuchungen sind auch von großem praktischen Interesse für die Erzeugung und Anwendung extrem tiefer Temperaturen. Da der Wärmewiderstand R_K unterhalb von 1 K mit abnehmender Temperatur stark zunimmt, stellt er bei derartigen Experimenten einen der physikalisch bedingten begrenzenden Faktoren dar.

In der vorliegenden Arbeit wird der Einfluß von Festkörperparametern anhand systematischer Messungen an Systemen aus verschiedenen Metallen und HeII bzw. flüssigem ^{3}He auf den Kapitza-Widerstand untersucht. Die verwendeten Reinstmetalle Pb, Cu, Al und Ni haben alle eine f.c.c.-Struktur. Die Debye-Temperaturen liegen zwischen 100 und 450 K. Für die Messungen wurde der Temperaturbereich von 0,3 bis 1,3 K gewählt, weil die bisherigen Untersuchungen sich mit Aus-

nahme von Kupfer ausschließlich auf Temperaturen $T < 0{,}3$ K und $T > 1$ K erstrecken. Gerade in diesem Temperaturbereich sind aber Übergänge zwischen den verschiedenen Wärmetransportmechanismen zu erwarten.

Die Meßergebnisse werden im Hinblick auf die verschiedenen theoretischen Modelle diskutiert.

3 Theoretische Grundlagen: Phonon Radiation Limit und Acoustic-Mismatch-Theorie

Die folgenden beiden Abschätzungen des Kapitza-Widerstandes bilden die obere und untere Grenze für die absolute Größe desselben. Bei Temperaturen T > 1 K entsprechen die experimentellen Werte eher dem Phonon Radiation Limit, während sie bei Temperaturen T < 0,1 K besser durch die Acoustic-Mismatch-Theorie wiedergegeben werden.

Es seien zwei isotrope dielektrische Medien (Index i = 1,2) mit der Grenzfläche A gegeben. Bei tiefen Temperaturen geschieht der Wärmetransport durch akustische Phononen mit der Dispersionsrelation $\omega = c_\sigma k$, wobei ω die Winkelfrequenz, k der Betrag des Wellenvektors und c_σ die Schallgeschwindigkeit in der Polarisationsrichtung $\sigma = 1, 2, 3$ ist. Bei tiefen Temperaturen liefert die Debye'sche Näherung die Phononenenergiedichte bei der Temperatur T innerhalb eines Mediums

$$E_\sigma = \frac{\hbar}{2\pi^2 c_\sigma^3} \int_0^{\omega_{\sigma max}} \omega^3 \left[e^{\hbar\omega/kT} - 1 \right]^{-1} d\omega$$

oder

$$E_\sigma = \frac{k^4 T^4}{2\pi^2 \hbar^3 c_\sigma^3} \int_0^{x_{\sigma max}} x^3 (e^x - 1)^{-1} \, dx \, , \quad x = \hbar\omega/kT \, .$$

Die obere Integrationsgrenze läßt sich bei genügend tiefen Temperaturen durch ∞ ersetzen. Dann ist die Integration näherungsweise möglich und man erhält

$$E_\sigma = \frac{\pi^2 k^4}{30\hbar^3} \frac{T^4}{c_\sigma^3} \, .$$

Dies steht in Analogie zum Stefan-Boltzmannschen Strahlungsgesetz für Photonen.

Die Zahl der Phononen, die pro Zeit- und Flächeneinheit auf

die Grenzfläche trifft, ergibt sich wie die Wandstoßzahl in der Gaskinetik zu $\frac{1}{4} c_\sigma n_\sigma$. Dabei ist n_σ die Zahl der Phononen pro Volumeneinheit. Die Energie, die pro Zeiteinheit auf die Flächeneinheit der Grenzfläche auftrifft, ist dann gleich $\frac{1}{4} c_\sigma E_\sigma$. So läßt sich für den gesamten Energiestrom, der vom Medium i durch die Grenzfläche tritt, schreiben:

$$\dot{Q}_i = \sum_\sigma \frac{1}{4} A \, c_{i\sigma} \, E_{i\sigma} \, \bar{\alpha}_{i\sigma} . \qquad (1)$$

$\bar{\alpha}_{i\sigma}$ ist die über alle Einfallswinkel φ integrierte Transmissionswahrscheinlichkeit der Phononen:

$$\bar{\alpha}_{i\sigma} = \int_0^{\pi/2} 2 \, \alpha_{i\sigma}(\varphi) \cos\varphi \sin\varphi \, d\varphi .$$

Es wird die wesentliche Vereinfachung gemacht, daß α temperatur- bzw. frequenzunabhängig ist.

Für ein isothermes System gilt $\dot{Q}_1 = \dot{Q}_2$. Daraus folgt die Bedingung

$$\sum_\sigma \frac{\bar{\alpha}_{1\sigma}}{c_{1\sigma}^2} = \sum_\sigma \frac{\bar{\alpha}_{2\sigma}}{c_{2\sigma}^2} .$$

Das Medium mit der kleineren Schallgeschwindigkeit hat infolge der hier auftretenden Totalreflexion den kleineren mittleren Transmissionskoeffizienten.

Bei Temperaturungleichheit ist die resultierende Wärmestromdichte:

$$\frac{\dot{Q}}{A} = \frac{\dot{Q}_1}{A} - \frac{\dot{Q}_2}{A} = \frac{\pi^2 k^4}{120 \hbar^3} \sum_\sigma \frac{\bar{\alpha}_{1\sigma}}{c_{1\sigma}^2} \left(T_1^4 - T_2^4 \right) .$$

Haben die beiden Medien die Temperaturen T und T+ΔT und gilt $\Delta T \ll T$, so ist

$$\frac{\dot{Q}}{A} = \frac{\pi^2 k^4}{30 \hbar^3} \sum_\sigma \frac{\bar{\alpha}_{1\sigma}}{c_{1\sigma}^2} T^3 \, \Delta T .$$

Der Vergleich mit der Definitionsgleichung des Kapitzawiderstandes liefert

$$h_K = R_K^{-1} = \frac{\pi^2 k^4}{30\hbar^3} \sum_\sigma \frac{\bar{\alpha}_{1\sigma}}{c_{1\sigma}^2} T^3$$

und umgeschrieben

$$R_K = \frac{30\hbar^3}{\pi^2 k^4} \left[\frac{\bar{\alpha}_{11}}{c_{11}^2} + \frac{2\bar{\alpha}_{1t}}{c_{1t}^2} \right]^{-1} T^{-3} \qquad (2)$$

mit den Indizes l = longitudinal und t = transversal.

Mit den gegebenen Voraussetzungen läßt sich h_K auch unmittelbar aus Gleichung (1) ableiten

$$h_K = \frac{d}{dT}\left(\dot{Q}_i / A \right) = \frac{1}{4} \sum_\sigma c_{i\sigma} \bar{\alpha}_{i\sigma} \frac{dE_{i\sigma}}{dT} = \frac{1}{4} \sum_\sigma c_{i\sigma} \bar{\alpha}_{i\sigma} C_{i\sigma} \,. \qquad (3)$$

$C_{i\sigma}$ ist dabei die spezifische Wärme des Mediums i in der Polarisationsrichtung σ. Die Temperaturabhängigkeit des Kapitza-Widerstandes ist also eine direkte Folge der Debye'schen Näherung für die spezifische Wärme. R_K kann aber auch mit der experimentell gefundenen Temperaturabhängigkeit der spezifischen Wärme verknüpft werden. Es sei außerdem vermerkt, daß der Wärmewiderstand von der Richtung des Wärmestromes unabhängig ist.

Nun läßt sich ein minimaler Wert für den Wärmewiderstand ableiten. Für den Fall $\bar{\alpha}_{i\sigma} = 1$ fließt der maximal mögliche Wärmestrom, da alle auf die Grenzfläche auftreffenden Phononen auch hindurchtreten können, und man erhält:

$$R_K^{PR} = \frac{30\hbar^3}{\pi^2 k^4} c_t^2 \left[2 + (c_t/c_l)^2 \right]^{-1} T^{-3} \,. \qquad (4)$$

Diesen Grenzfall nennt man Phonon Radiation Limit (PR).

Da die hier auftretenden langwelligen Phononen quantisierte Schallwellen sind, werden die Transmissionskoeffizienten mit den entsprechenden klassischen Ausdrücken für Schallwellen berechnet. Dieser Weg wurde in den grundlegenden theoretischen Arbeiten über den Kapitza-Widerstand von Khalatnikov [2] sowie Mazo und Onsager [3] für Systeme Festkörper/HeII, von Bekarevich und Khalatnikov [10] und Gavoret [11] für Festkörper/^{3}He flüssig sowie von Little [12] für ein System Festkörper/Festkörper beschritten.

Eine auf die Grenzfläche treffende akustische Welle kann im allgemeinen Fall vier auslaufende Wellen hervorrufen: je eine transversale und longitudinale reflektierte Welle und je eine transversale und longitudinale transmittierte Welle. Unter bestimmten Voraussetzungen werden jedoch nur Oberflächenwellen (Rayleigh-Wellen) angeregt.

Die Phasengeschwindigkeiten sind mit den Einfalls- und Ausfallswinkeln über das Snellius'sche Gesetz verbunden. Die Transmissionskoeffizienten werden als Funktion der akustischen Impedanzen $Z_{i\sigma}$, das sind Produkte aus Dichte ρ_i und Schallgeschwindigkeit $c_{i\sigma}$, angegeben. Mit den vereinfachenden Randbedingungen, daß sowohl die Normalkomponente der jeweiligen Verschiebungsvektoren als auch die Normalkomponente der Dehnungen an der Grenzfläche kontinuierlich verlaufen, lassen sich mit größerem Aufwand die Transmissionskoeffizienten berechnen und über alle Winkel integrieren.

Die Wirkung unterschiedlicher akustischer Impedanzen auf die Transmission der Phononen läßt sich an einem einfachen System veranschaulichen. Hierzu werden nur die longitudinalen Wellen beim Wärmeübergang von HeII an Kupfer als Modellsubstanz für den Festkörper betrachtet. Es seien $\rho_L = 0{,}145$ g cm^{-3} die Dichte und $c_L = 0{,}24\ 10^5$ cm s^{-1} die Schallgeschwindigkeit von HeII sowie $\rho = 9$ g cm^{-3} und $c_l = 5\ 10^5$ cm s^{-1} die Dichte und die longitudinale Schallgeschwindigkeit des Festkörpers. Da $c_L < c_l$, gibt es einen kritischen Konus mit dem Halbwin-

kel φ_c = arc sin $(c_L/c_l) \approx 3^\circ$, innerhalb dessen Phononen die Grenzfläche durchtreten können. Der Anteil dieser Phononen beträgt

$$1/2 \sin^2\varphi_c = 1/2 (c_L/c_l)^2 \approx 10^{-3}$$

Der kleine kritische Konus erlaubt es, näherungsweise den Transmissionskoeffizienten für senkrechten Einfall heranzuziehen [13]:

$$\alpha_l \text{ (normal)} = 4 Z_L Z/(Z_L + Z)^2$$

Z_L und Z sind die akustischen Impedanzen des Heliums bzw. des Festkörpers. Hier ist $Z_L \ll Z$, so daß

$$\alpha_l \text{ (normal)} \approx 4 Z_L/Z \approx 3 \cdot 10^{-3}.$$

Insgesamt ist es also nur einem Anteil weniger 10^{-5} der Phononen möglich, vom Helium in den Festkörper einzudringen. Man spricht daher von einem Acoustic-Mismatch (AM), der im Falle des extrem leichten Heliums am deutlichsten in Erscheinung tritt.

Die vollständige Berechnung des Kapitza-Widerstandes für Systeme Festkörper/^{4}He flüssig führt zu dem Ergebnis:

$$R_K^{AM} = \frac{15 h^3}{16\pi^5 k^4} \frac{\rho c_t^3}{\rho_L c_L F_K} T^{-3} . \qquad (5)$$

Dabei ist der Faktor F_K eine Funktion von c_l/c_t, die nur schwach abhängig vom Festkörper ist und für normalleitende Metalle ungefähr den Wert 1,5 hat. F_K setzt sich aus zwei Funktionen F_1 und F_2 zusammen. F_1 betrifft die Transmission von Helium-Phononen mit einem Einfallswinkel kleiner als die kritischen Winkel arc sin (c_L/c_t) und arc sin (c_L/c_l). Bei größeren Winkeln werden Oberflächenwellen angeregt, die

sich parallel zur Oberfläche mit der Schallgeschwindigkeit c_o ausbreiten und exponentiell abklingen. Ihre Amplitude hat ein scharfes Maximum bei dem Winkel φ = arc sin (c_L/c_o). Da $c_o \approx 0{,}9\ c_t < c_l$ liegt dieser Winkel etwas außerhalb des äußeren kritischen Konus. Werden diese abklingenden Oberflächenwellen gestreut oder absorbiert, so kann Energie vom Phononensystem des flüssigen Heliums auf das des Festkörpers übertragen werden. Die Funktion F_2 ist ein Maß dafür. Es wird aber gezeigt, daß der Beitrag der Oberflächenwellen im Falle starker Dämpfung den Kapitza-Widerstand nur um ungefähr einen Faktor 1/2 bis 1/3 reduziert [14].

Die Temperaturabhängigkeit des Kapitza-Widerstandes R_K ergibt sich nach Gleichung (5) zu $R_K \approx T^{-3}$. Der Einfluß des Festkörpers ist durch den Ausdruck $\rho\ c_t^{\,3}\ F_K^{-1}$ gegeben, der des Heliums durch $(\rho_L c_L)^{-1}$. Die Festkörpereigenschaften werden häufig auch mit Hilfe der Debye-Temperatur Θ_D ausgedrückt, da $\rho\ c_t^{\,3} \approx M\ \Theta_D^{\,3}$ ist (M = Molekulargewicht).

Die theoretische Behandlung des Kapitza-Widerstandes zwischen flüssigem ^{3}He und Festkörpern erfolgt auf dem gleichen Wege wie im Falle des ^{4}He. Die Schallausbreitung in ^{3}He und ^{4}He ist jedoch unterschiedlich, was durch die Anwendung unterschiedlicher Statistiken zum Ausdruck kommt. Die Relaxationszeit der ^{3}He-Quasiteilchen nimmt mit T^{-2} zu, so daß sich unterhalb einer bestimmten Temperatur (0,2 K) gewöhnlichter Schall nicht mehr ausbreiten kann. Statt dessen wird der nullte Schall angeregt, d. h. für diesen Bereich müssen die Fermi-Eigenschaften des flüssigen ^{3}He berücksichtigt werden. Trotzdem ergibt sich für R_K ein formal ähnliches Ergebnis wie für ^{4}He. Oberhalb von 0,2 K brauchen die Fermi-Eigenschaften nicht berücksichtigt zu werden, und man erhält als Resultat die Gleichung (5). Daraus folgt, daß das Verhältnis der Kapitza-Widerstände von ^{3}He und ^{4}He in diesem Temperaturbereich vom Festkörper unabhängig ist:

$$R_K(^3\mathrm{He}) \,/\, R_K(^4\mathrm{He}) = (\rho_L c_L)_{^4\mathrm{He}} \,/\, (\rho_L c_L)_{^3\mathrm{He}} \approx 2\ .$$

Die Idealisierung des physikalischen Sachverhaltes, d. h. die Übertragung von Volumeneigenschaften auf die Oberflächenregion, machen die zwar qualitativ richtigen aber quantitativ völlig unzureichenden theoretischen Vorhersagen verständlich.

Im Grenzfall der sehr tiefen Temperaturen $T < 0{,}1$ K, wenn die Wellenlängen der beteiligten Phononen groß sind gegenüber charakteristischen Längen der gestörten Oberflächenschicht, sollte das Modell jedoch zutreffen. Dies wird auch experimentell bestätigt. Mit einer modifizierten Acoustic-Mismatch-Theorie [7,15] können die Meßergebnisse im Temperaturbereich $T \leq 0{,}1$ K richtig beschrieben werden. Die Einbeziehung der Phononen-Attenuation bewirkt eine Aufweitung der kritischen Konen, wodurch ein verstärkter Wärmestrom durch die Oberfläche treten kann. Bei höheren Temperaturen läßt sich diese Theorie jedoch den experimentellen Ergebnissen nicht anpassen, denn es ergeben sich unrealistische Werte für einzelne Parameter.

Man kommt zu der Folgerung, daß das Khalatnikov'sche Modell sicherlich auch bei den höheren Temperaturen gültig ist. Es wird aber durch andere, parallel wirkende Mechanismen überdeckt [8, 16], die auch bei idealen Oberflächenbedingungen wegen der Existenz einer durch van-der-Waals-Kräfte gebundenen, verdichteten Heliumschicht an der Oberfläche möglich sind.

Der anomal niedrige Kapitza-Widerstand zwischen ^{3}He und paramagnetischen Substanzen bei extrem tiefen Temperaturen $T < 10^{-2}$ K ist ein anderer Fall eines parallelen Wärmetransportes [17, 18, 19]. Dieser Mechanismus wird erklärt durch magnetische Dipolwechselwirkung zwischen den ^{3}He-Kernspins und den Eletronenspins. Es besteht hier eine recht gute quantitative Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment. Ein ähnliches Verhalten wird auch für ferromagnetische Metalle erwartet und gefunden, deren magnetische Ordnungstemperaturen im mK-Bereich liegen.

4 Apparaturbeschreibung

4.1 Meßzelle

Der Kapitza-Widerstand kann am einfachsten und genauesten gemessen werden, wenn der Temperatursprung an der Oberfläche groß ist verglichen mit den Temperaturgradienten innerhalb der beiden Medien.

Dieser Sachverhalt ist in dem hier ausgewählten Temperaturbereich für Reinstmetalle (normal- und supraleitend) und superfluides Helium gegeben. Im Falle des flüssigen ^{3}He liegen die Verhältnisse allerdings ungünstiger, weil es eine geringere Wärmeleitfähigkeit hat. Die Abschätzung der in den Medien auftretenden Temperaturgradienten erfolgt weiter unten (Abschnitt 8).

Es wird eine koaxiale Meßanordnung verwendet, die auch in axialer Richtung weitgehend symmetrisch ist. Die Anordnung ergibt im Gegensatz zu der im allgemeinen benutzten linearen Meßanordnung eine wohldefinierte Grenzfläche zwischen dem Metall und dem flüssigen Helium.

Eine schematische Darstellung der Meßzelle ist in Abb. 1 gegeben. Im Zentrum befindet sich die zylindrische Metallprobe (1) mit einer Länge von 30 mm und einem Durchmesser von 8 mm. Zwei Durchgangsbohrungen von jeweils 1,6 mm Durchmesser nehmen die Heizung (2) *) und einen Kohlewiderstand (3) **) als Temperaturmeßfühler auf. In der zentrischen Bohrung befindet sich die Heizung (2), die aus einem Kupferstab von 1 mm Durchmesser und ca. 29 mm Länge besteht, auf den ein Konstantandraht aufgewickelt ist. Dadurch kann ein über die

---

*) isolierter Konstantandraht (Isotan), Ø 0,25 mm, 965 Ω/m
**) Allen-Bradley, 10 Ω, 1/8 W, Länge 4 mm, Ø = 1,6 mm

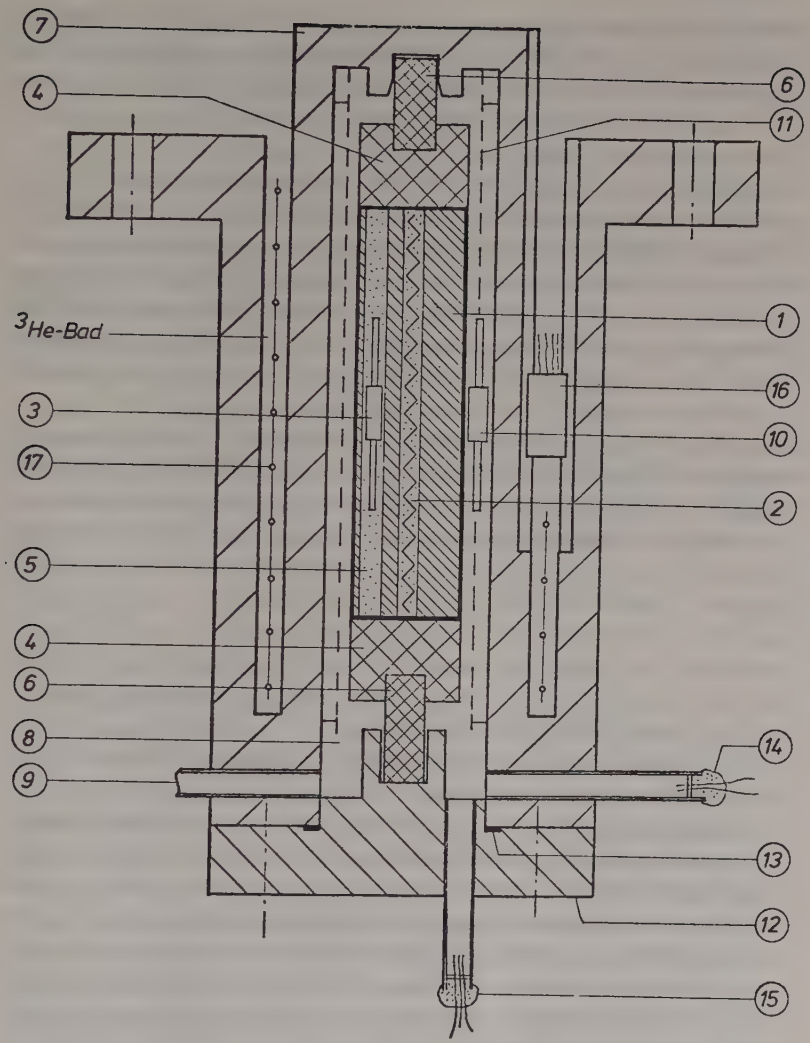


Abb.1 Meßanordnung zur Bestimmung des Kapitza-Widerstandes.

Länge der Probe gleichmäßiger, radialer Wärmestrom erzeugt werden. In der exzentrischen Bohrung befindet sich der Kohlewiderstand (3), etwa in Höhe der Probemitte. Die Stirnflächen der Probe sind durch 6 mm dicke Scheiben aus glasfaserverstärktem Kunststoff (GfK) (4) thermisch isoliert. Die Faserung verläuft parallel zu den Kreisflächen, da senkrecht zur Faserung die Wärmeleitung am geringsten ist. Heizung, Kohlewiderstand und GfK sind mit einem Epoxidharzkleber *) in bzw. an der Probe befestigt. Nylonstützen (6) fixieren die Probe an den Stirnseiten der zylindrischen Meßkammer (7). Ihre Wände bestehen aus 3 mm dickem Kupfer. Innen- und Außenflächen sind mechanisch poliert. Der freibleibende Ringspalt (8) zwischen Probe und Kammer hat eine Weite von 2 mm. Der Boden (12) der Meßkammer ist abnehmbar, damit die Probe ausgewechselt werden kann, ohne das w. u. beschriebene ^{3}He-Kühlsystem öffnen zu müssen. Die Dichtung des Bodens (12) zum Vakuumraum erfolgt mittels eines Indiumringes (13).

Zum Füllen der Meßkammer mit Helium dient eine Edelstahlkapillare (9), die die Kammer mit einem äußeren Gaseinlaßsystem verbindet. Das Volumen des Systems ist so bemessen, daß bei einem Fülldruck von maximal 1,5 bar die Kammer im kalten Zustand vollständig mit Flüssigkeit gefüllt ist und der Restdruck nur einige mbar beträgt. Zur Messung der Helium-Temperatur ist in derselben Höhe wie der Kohlewiderstand (3) innerhalb der Probe im Ringspalt (8) ein weiterer Kohlewiderstand (10) an einem dünnen Edelstahlgerüst (11) aufgehängt. Er ist an zwei diametralen Mantelflächenabschnitten nur jeweils 0,2 mm von den Grenzflächen des Ringspaltes entfernt. Um auch während der Messung kontrollieren zu können, ob der Kohlewiderstand die Probe oder die Kammerwand berührt, wurde er an diesen Stellen mit einem dünnen Film aus Leitsilber versehen, der elektrischen Kontakt zu einer der Zuleitungen hat.

---

*) Versamid 140/Epoxidharz BN 710, Firma Schering AG, Berlin

Die Kohlewiderstände (3) und (10), deren äußere Lackschicht entfernt wurde, wurden aus einer Serie von Widerständen ausgewählt, die zur Alterung etwa zehnmal auf 4,2 K abgekühlt und wieder auf Raumtemperatur aufgewärmt worden waren.

Die Abbildung zeigt noch zwei Stromdurchführungen (14) und (15) für die Heizung und die Kohlewiderstände. Die Zuleitungen zum Kohlewiderstand (10) sind an die Durchführung (14) angeschlossen. Die Zuleitungen des Widerstandes (3) und der Probenheizung (2) führen zur Durchführung (15) im Boden der Meßkammer. Alle Zuleitungen bestehen aus schlecht wärmeleitendem Chromel, Ø = 0,1 mm.

Die Meßkammer (7) bildet das Unterteil des Badbehälters vom ^{3}He-Kühlsystem. Sie ist also bis auf die Bodenfläche allseitig vom ^{3}He-Bad umgeben. In diesem Bad ist ein Germaniumwiderstand (16) zur Temperaturmessung angeordnet. Die Heizung (17) dient zur Temperaturregelung. Alle elektrischen Zuleitungen und die Füllkapillare sind an der ^{3}He-Kammer thermisch kontaktiert.

4.2 Der ^{3}He-Kryostat

^{3}He-Badkryostate werden zur Erzeugung von Temperaturen zwischen 0,3 und 1,2 K eingesetzt. Dabei wird ^{3}He-Gas in mehreren Stufen zunächst vorgekühlt und dann kondensiert. Zur weiteren Temperaturerniedrigung wird die Dampfphase über dem thermisch gut isolierten ^{3}He-Bad abgepumpt. Dazu dienen Adsorptions-, Diffusions- und mechanische Pumpen. Bei einem geschlossenen ^{3}He-Kreislauf wird das abgepumpte ^{3}He-Gas nach entsprechender Kompression und Vorkühlung über die Kondensationsstufe dem Bad wieder zugeführt.

Herkömmliche Kryostate benutzen Vorkühlstufen mit Temperaturen von 77 K (LN_2), 4,2 K (HeI) und 1,3 K (HeII), wobei die letzte Stufe ein diskontinuierlich betriebenes, abgepumptes

HeII-Bad ist. Für die vorgesehenen Messungen waren die zu erwartenden Gleichgewichtseinstellzeiten so lang, daß ein Kryostat mit diskontinuierlichem Betrieb hierfür nicht verwendet werden konnte.

Deshalb wurde ein Kryostat entwickelt, der sowohl einen geschlossenen ^{3}He-Kreislauf als auch eine kontinuierlich arbeitende, mit superfluidem He gekühlte Kondensationsstufe hat. Die Kälteleistung dieser Stufe ist so bemessen, daß auf das sonst notwendige HeI-Bad mit 4,2 K verzichtet werden kann. Dieser Kryostat ist also für den Dauerbetrieb, d. h. für Langzeitexperimente geeignet.

In Abb. 2 ist der Aufbau des ^{3}He-Kryostaten schematisch dargestellt. Ein Badkryostat (1) in Weithalsausführung mit einem LN_2 gekühlten Strahlungsschutz (2) nimmt das Nachfüllsystem (3) für HeII und die Komponenten des ^{3}He-Kreislaufes auf. Das komprimierte ^{3}He-Gas tritt mit Raumtemperatur über den Anschluß (4) in den Kryostaten ein. Am Wärmeaustauscher (5), der mit dem LN_2-Strahlungsschutz in Wärmekontakt steht, wird es auf etwa 80 K vorgekühlt. In den nachfolgenden Wärmetauschern (6, 7, 8), die auf verschiedenen Temperaturniveaus im Gasraum über dem HeII-Bad (9) angeordnet sind, erfolgt die weitere Temperaturerniedrigung. Im Wärmetauscher (10) kondensiert flüssiges ^{3}He, das über die Drosselkapillare (11) in die Kammer (12) gelangt und dort ein ^{3}He-Bad bildet. Mit dem Flansch (13) ist die Meßzelle (14) an das ^{3}He-Kühlsystem angeschlossen.

Die Temperatur des ^{3}He-Bades wird durch Druckerniedrigung über dem siedenden ^{3}He eingestellt. Dazu wird das Gas über die Leitung (15) abgesaugt. Um die Wärmezufuhr durch Strahlung auf ein Minimum zu reduzieren, ist die Saugleitung abgewinkelt und enthält die Baffles (16). Das Dampfdruckthermometer (17) dient neben dem schon in Abb. 1 gezeigten Germaniumwiderstand zur Temperaturbestimmung des ^{3}He-Bades. Die Zuleitung zum Dampfdruckmeßvolumen ist zur Wahrung der Übersichtlichkeit

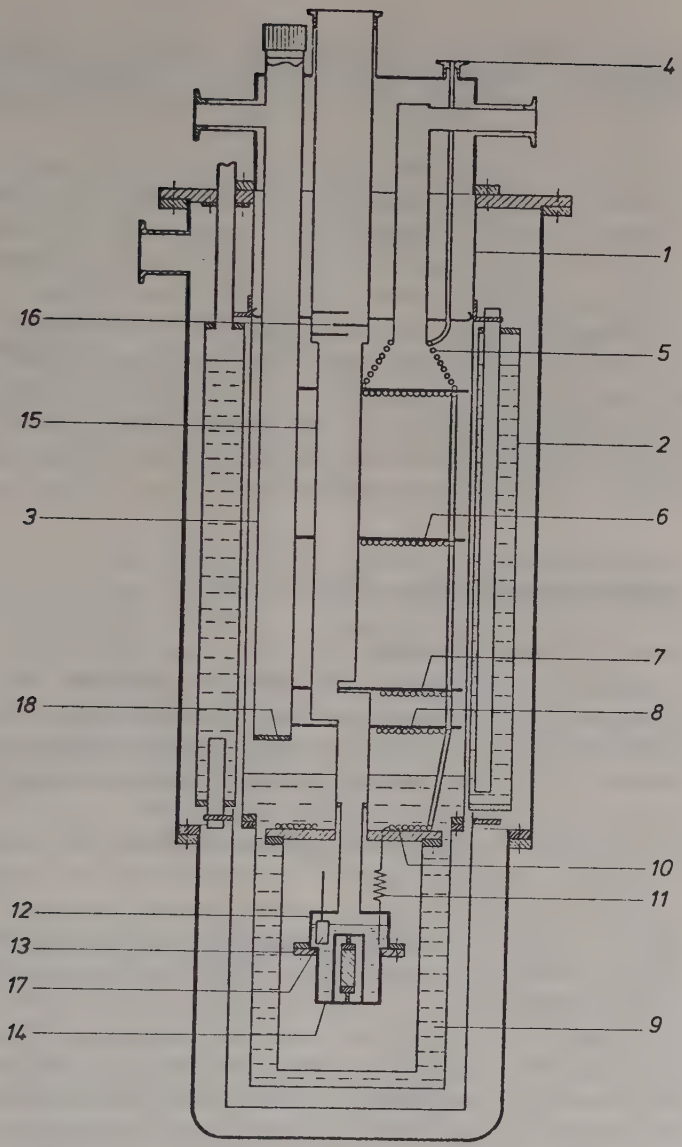


Abb.2 Schematischer Aufbau des ^{3}He-Kryostaten.

nicht eingezeichnet. Die außerhalb des Kryostaten liegenden Komponenten des ^{3}He-Kreislaufes sind in [65] zusammen mit den konstruktiven Einzelheiten und den Betriebsdaten beschrieben.

Zur Nachfüllung des HeII-Bades (9) bei konstanter Temperatur wird zunächst normal siedendes Helium unter Entspannung in das Nachfüllsystem (3) übergeleitet. Anschließend wird der Druck über diesem Bad reduziert. Bei Druck- bzw. Temperaturgleichheit des Bades im Nachfüllsystem mit dem HeII-Bad (9) tritt Flüssigkeit durch das Superfilter (18) hindurch und gelangt in das HeII-Bad, ohne dessen Temperatur wesentlich zu stören. Das Superfilter wirkt also als temperaturgesteuertes Ventil für HeII [20]. Mit Hilfe von Niveaufühlern läßt sich der Nachfüllvorgang automatisch steuern und das Niveau des HeII-Bades in der Kondensationsstufe auf 5 mm konstant halten.

4.3 Temperatureinstellung im ^{3}He-Kryostaten

Die Temperatur des HeII-Bades wird mit einem Regelsystem konstant gehalten, das aus einem Temperaturmeßfühler in der Flüssigkeit, einem elektronischen Regelgerät und einem elektrodynamischen Regelventil in der Absaugleitung des Bades besteht. Die Abweichung des Meßfühlers von einem eingestellten Sollwert wird in ein Signal umgesetzt, das die Öffnung des Ventils und damit den abgesaugten Mengenstrom steuert.

Für die vorliegenden Untersuchungen wurden in der Kondensationsstufe Temperaturen zwischen 1,25 und 1,4 K eingestellt. Das entspricht Drücken P = 1,2 bis 2,9 mbar über dem Bad. Die niedrigen Drücke führen zu einer mit abnehmender Temperatur zunehmenden Trägheit der Temperaturregelung. Änderungen der thermischen Belastung des HeII-Bades, wie sie in erster Linie durch den Nachfüllvorgang selbst hervorgerufen werden, bewirken daher je nach Temperatur bzw. Druck des HeII-Bades unterschiedliche Temperaturstörungen. Größe (ΔT)

und Dauer (t_1) dieser Störungen sind aus Tabelle 1 ersichtlich. Die Dauer t_1 ist in Relation zur Zeit t_o zu sehen, die zwischen zwei Nachfüllvorgängen vergeht.

Tabelle 1 Temperaturkonstanz des Kryostaten

T_{HeII} [K]	ΔT [K]	$\Delta T/T$	t_1 [min]	t_o [min]	t_1/t_o	$T_{^3He}$ [K]	ΔT [mK]	$\Delta T/T$
1,25	0,04	$3 \cdot 10^{-2}$	5	60	$8 \cdot 10^{-2}$	0,4	1,6	$4 \cdot 10^{-3}$
						1,1	3,3	$3 \cdot 10^{-3}$
1,4	0,01	$1 \cdot 10^{-2}$	1	90	$1 \cdot 10^{-2}$	0,4	1,5	$4 \cdot 10^{-3}$
						1,1	2,5	$2 \cdot 10^{-3}$

Die Auswirkungen dieser Störungen auf die Temperatur des ^{3}He-Bades liegen unter 0,5 Prozent. Dies wird durch die ebenfalls in Tabelle 1 eingetragenen Werte veranschaulicht.

Die Temperatur des ^{3}He-Bades wird mit einem kalibrierten Germanium-Widerstand *) und mit einem ^{3}He-Dampfdruckthermometer gemessen. Beide Temperaturfühler sind direkt in der Flüssigkeit angeordnet (s. Abb. 1 und 2).

Die Dampfdrücke werden mit einem Kapazitätsmanometer **) bestimmt und nach der T_{62}- ^{3}He-Temperaturskale umgerechnet [57]. Weil die Meßstelle eine tiefere Temperatur hat als das Druckmeßgerät, müssen bei Temperaturen $T < 0,7$ K die Meßwerte korrigiert werden [21]. Kommt die mittlere freie

---

*) Scientific Instr., Modell 4 S-^{3}He

**) MKS Instr., Baratron 90 M - XR - 2,
Druckmeßkopf 90 H - 30

Weglänge in den Bereich des Durchmessers des Verbindungsrohres, baut sich infolge des thermischen Molekulardruckes eine Druckdifferenz zwischen dem kalten und warmen Rohrende auf. Da die Größe der Korrektur von der jeweiligen Beschaffenheit der Rohroberfläche beeinflußt wird, verliert diese Meßmethode mit sinkender Temperatur an Genauigkeit [22]. Im vorliegenden Fall macht die Korrektur bei 0,4 K etwa 50 mK aus.

Neben dem Dampfdruckthermometer wird deshalb ein für den Bereich T = 0,35 bis 3,2 K kalibrierter Germaniumwiderstand zur Temperaturmessung verwendet. Der Ge-Kristall ist in einer Metallkapsel gelagert, wobei ^{3}He-Gas als Kontaktmedium dient. Vom Hersteller werden die absolute Genauigkeit mit $\leq \pm 5$ mK und die Reproduzierbarkeit mit $\leq \pm 0{,}5$ mK angegeben. Während der Messungen des Kapitza-Widerstandes wurde mehrmals der Germaniumwiderstand mit dem Dampfdruckthermometer bei Temperaturen T > 0,7 K überprüft. Innerhalb der Fehlergrenzen konnten keine systematischen Abweichungen festgestellt werden.

Der Widerstand des Ge-Thermometers wird mittels Vierleitertechnik gemessen. Bei Temperaturen zwischen 3,2 und 1,6 K beträgt der Strom 10 µA, darunter 1 µA. Die am Widerstand anfallende Meßleistung hat im 10 µA-Bereich bei ca. 100 Ω einen maximalen Wert von 10^{-8} W. Bei der niedrigeren Stromstärke variiert die Belastung zwischen 10^{-10} W und 10^{-8} W, wobei sie mit abnehmender Temperatur zunimmt. Unter Berücksichtigung des Kapitza-Widerstandes führen diese thermischen Belastungen im ungünstigsten Fall zu Überhitzungen der Größenordnung 10^{-2} mK. Der Spannungsabfall wird mit einem Nanovolt-Gleichstromverstärker *) erfaßt und dann an einem Digitalvoltmeter und einem Schreiber abgelesen. Thermospannungen in den Zuleitungen werden durch Wechsel der Strompolarität kontrolliert. Die Überprüfung der Meßgeräte mit verschiedenen

---

*) Keithley Instr., Inc., Modell 140

Normalwiderständen (Genauigkeit ± 0,01 %) von 10 Ω bis 10 KΩ ergibt eine systematische Abweichung von + 0,1 bis 0,2 %. Der Widerstand kann auf ± 0,1 % genau abgelesen werden. Aufgrund der mit abnehmender Temperatur zunehmenden Empfindlichkeit dR/dT bedeutet das bei 1 K eine Schwankung von ± 0,5 mK (0,05 %) und bei 0,35 K eine Schwankung von ± 0,05 mK (0,01 %).

Die Widerstands-Temperatur-Charakteristik läßt sich mit ausreichender Genauigkeit durch orthogonale Polynome nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate annähern [23]:

$$\log T = \sum_{n=o}^{N} A_n (\log R)^n \quad . \qquad (6)$$

Die beste Annäherung der vorhandenen 21 Kalibrierpunkte ergibt sich hier für N = 7 mit einer mittleren quadratischen Abweichung $\Delta (\log T) = \pm 0{,}14\ 10^{-2}$. Im einzelnen sind die Differenzen zwischen eingegebener und berechneter Temperatur nicht größer als 6 mK. Für die in dieser Arbeit beschriebenen Messungen werden stets die nach Gleichung (6) ermittelten Temperaturen als Referenz angesehen.

5 Präparierung der Metallproben

Um den Einfluß von Festkörperparametern auf den Kapitza-Widerstand feststellen zu können, müssen neben dem Reinheitsgrad und der Kristallstruktur die Oberflächeneigenschaften bzw. deren Wirkung auf den Wärmeübergang bei den verschiedenen Proben vergleichbar sein. Als Oberfläche ist hier eine Grenzschicht anzusehen, die etwa eine Phononenstreulänge in den Festkörper hineinreicht.

Zur Bearbeitung der Metalloberflächen ist das bei derartigen Untersuchungen vielfach angewendete mechanische Polieren unzureichend. Zwar erhält man optisch glatte Oberflächen mit einer Rauhtiefe von etwa 1 µm, doch weichen die physikalischen und chemischen Eigenschaften der Oberflächenschicht von denen des ungestörten Metalls ab. Bei diesem Verfahren werden die Oberflächenkristallite zerkleinert und kaltverformt. Durch Einschlüsse von Oxiden und von Schleifmaterial entsteht eine amorphe Schicht (Beilby-Schicht) mit einer Dicke von etwa $5 \cdot 10^{-3}$ µm. Ferner werden Gitterbaufehler hervorgerufen, die 40 bis 50 µm tief in das Metall hineinreichen. Daher wird zur Präparierung der Metallproben eine Methode angewendet, wie sie auch bei der Untersuchung anderer Oberflächenphänomene erfolgreich eingesetzt wird. Dabei werden die Metalle zunächst getempert, dann elektrolytisch poliert und schließlich die Adsorptionsschichten im Vakuum entfernt. Das Elektropolieren hat den Vorteil, daß unerwünschte Oberflächenschichten auch größerer Dicke reproduzierbar abgetrennt werden können, so daß das ungestörte Material an der Oberfläche erscheint. Bei dieser Präparationsmethode ergaben sich hier die im Folgenden beschriebenen Einzelschritte.

Nach Ausführung der Dreh- und Bohrarbeiten wurden die geometrisch gleichen Proben mechanisch poliert. Zur Ausheilung von Gitterfehlern erfolgte eine Temperung unter Argon bei Normaldruck. Die Aufheiz- und Abkühlzeit betrug jeweils etwa fünf

Stunden. Die Höhe der Temperatur und die Dauer der Temperung bei den verschiedenen Metallen sind in Tabelle 2 aufgeführt. Von einer Temperung im Vakuum wurde abgesehen, da die Proben bei der weiteren Behandlung vergleichsweise lange der Atmosphäre ausgesetzt werden mußten. Eine unter UHV-Bedingungen saubere Metallfläche adsorbiert innerhalb von Sekunden ein bzw. mehrere Monoschichten, wenn der Gasdruck nur auf 10^{-5} mbar ansteigt. Erneutes Evakuieren ohne Ausheizen trennt dann nur die obersten, locker gebundenen Adsorptionsschichten wieder ab. Eine Verunreinigung der Probe durch das beim Tempern verwendete Argon ist nicht gegeben, weil die Edelgase sich auch bei höheren Temperaturen nicht in reinen Metallen lösen. Die physikalische Adsorption, die durch schwache Bindungskräfte charakterisiert ist, hat keine Diffusion zur Folge [24].

Dann wurden die Klebungen (Meßfühler, Stirnflächen) ausgeführt. Die Klebeflächen waren durch Ätzung oder mechanisch aufgerauht. Die Aushärtung des Klebers erfolgte innerhalb einer Stunde bei 80°C. Der Kleber war gegenüber allen verwendeten Elektrolyten beständig. In Vorversuchen ist die Dichtigkeit der Klebungen bei 4,2 K mit einem Helium-Lecksuchgerät geprüft worden.

Da Kohlewiderstand und Heizung ohne elektrischen Kontakt zur Probe montiert waren, mußte für das Elektropolieren eine weitere elektrische Zuleitung (in der exzentrischen Bohrung) angebracht werden. Sie wurde zusammen mit den anderen Leitungen durch eine der GfK-Stirnflächenscheiben geführt und später zur elektrischen Erdung der Probe benutzt. Die experimentelle Anordnung für das Elektropolieren war rotationssymmetrisch. In der Mitte befand sich die Probe (Anode), umgeben von einer ringförmigen, zylindrischen Kathode. Der Abstand zwischen den Elektroden betrug etwa 1 cm. Ein magnetischer Rührer sorgte für die Durchmischung des Elektrolyten. Die Zusammensetzung der Elektrolyte für die verschiedenen Metalle sowie weitere

Einzelheiten sind in Tabelle 2 angegeben. Bei den Elektrolyten aus Perchlorsäure und Essigsäureanhydrid wurde die Temperatur während des Mischens und des Elektropolierens mit Hilfe eines Eisbades immer unterhalb von 32°C gehalten. Durch das Elektropolieren kann sich auf der Oberfläche ein dünner Film aus Metalloxyd oder von anderer chemischer Zusammensetzung (Komplexsalze) bilden, der durch Abwaschen mit H_2O oder vorsichtiges Ätzen wieder entfernt wurde [25].

Schließlich wurde die Probe in möglichst kurzer Zeit (15 - 30 min) in die Meßkammer eingebaut. Um eine erneute Oxidation der Oberfläche auszuschließen, wurde die Probe während dieser Phase schon unter einer Helium-Atmosphäre gehalten. Die Meßkammer wurde dann nach mehreren Spülungen mit Heliumgas 24 Stunden evakuiert (10^{-5} mbar), bevor der Kryostat abgekühlt wurde.

Tabelle 2 Präparierung der Proben.

Metall Reinheit [%]	Temperung Temp. [°C]	Temperung Dauer [h]	Kathode	Elektrolyt-zusammensetzung	abgetragene Schicht [µm]	gemessene Oberfläche [cm^2]	Bemerkungen
Cu 99,999	610	46	Cu	35 ml Phosphorsäure (s.g. 1,89) 100 ml H_2O	50	7,49 ± 0,4%	
Pb 99,999	250	20	Cu	454 ml Essigsäureanhydrid (1,065) 40 ml Perchlorsäure (1,67) 6 ml H_2O	106	6,64	Vor und nach dem Elektropolieren Behandlung nacheinander mit verdünnter Salpetersäure verdünnter Natronlauge Alkohol
Al 99,999	450	20	Al	131 ml Essigsäureanhydrid 64 ml Perchlorsäure	42	7,35	Vor und nach dem Elektropolieren Behandlung nacheinander mit verdünnter Natronlauge bei 60°C verdünnter Salpetersäure H_2O
Ni 99,99	610	24	Ni	390 ml Schwefelsäure (1,84) 290 ml H_2O	61	7,15	

6 Meßverfahren

Zur Bestimmung des Kapitza-Widerstandes wird eine stationäre Meßmethode angewendet. Hierbei mißt man die Temperaturerhöhung der Probe gegenüber der Umgebung, wenn in der Probe ein stationärer Wärmestrom erzeugt wird. Ist $\Delta T \ll T$, so berechnet sich der Kapitza-Widerstand direkt aus seiner Definitionsgleichung $R_K = \Delta T \, A \, \dot{Q}^{-1}$.

Die Grenzfläche zwischen dem Festkörper und dem Helium ist die Mantelfläche $A = \pi \, L \, \bar{D}$ der Probe. Die Probenlänge L und der mittlere Probendurchmesser $\bar{D}$ wurden vor und nach dem Elektropolieren mit einer Mikrometerschraube gemessen. Prinzipiell kann die beim Elektropolieren abgetragene Schicht und damit der endgültige Durchmesser auch aus Stromstärke und Zeit berechnet werden. Weil die hier untersuchten Metalle jedoch nicht alle eine eindeutige Wertigkeit bei der Elektrolyse haben, hätte diese Methode zu ungenaue Werte für $\bar{D}$ ergeben. Die direkte Messung von $\bar{D}$ liefert zudem die Kontrolle, ob das Metall gleichmäßig von der Oberfläche abgetragen worden ist. Der Einfluß der Oberflächenrauhigkeiten auf die effektive Wärmeübertragungsfläche wird weiter unten diskutiert.

Der in der Probe erzeugte Wärmestrom $\dot{Q}$ wird mittels Vierleitertechnik durch Strom- und Spannungsmessung erfaßt. Die Heizleistung wird derart dosiert, daß die Bedingung $\Delta T < 0{,}1 \, T$ erfüllt ist.

Zur Bestimmung der Temperaturdifferenz ΔT müssen die Widerstandswerte des Ge-Thermometers im ^{3}He-Bad und die der beiden Kohlewiderstände in der Meßzelle bei stationären Bedingungen gemessen werden. Die Meßgeräte für den Ge-Widerstand wurden bereits in Abschnitt 4.3 beschrieben. Für die beiden Kohlewiderstände standen zwei Zweileiter-Wechselstrombrücken (380 Hz, Phasenabgleich) zur Verfügung, so daß alle drei Widerstandswerte gleichzeitig registriert werden konnten.

Die Temperaturdifferenz ΔT wurde nach zwei verschiedenen Verfahren ermittelt, deren Einzelschritte anhand der Abb. 3, A und B erläutert werden. Beim Verfahren A werden zuerst bei ausgeschaltetet Probenheizung (isothermer Zustand der Meßkammer, $\dot{Q} = 0$) die Widerstandswerte der Kohlewiderstände im Helium ($R_{He}1$), in der Probe (R_P1) und des Ge-Thermometers (R_G1) registriert (Schritt a). Bei eingeschalteter Heizung ($\dot{Q} \neq 0$) erhöhen sich sämtliche Temperaturwerte (Schritt b). Nun wird die ^{3}He-Bad-Temperatur so weit erniedrigt, bis der Kohlewiderstand im Helium wieder den ursprünglichen Wert $R_{He}1$ erreicht hat (Schritt c). Bei diesem Zustand wird ein zweiter Wert R_P2 für die Probentemperatur abgelesen. Schließlich wird noch bei $\dot{Q} = 0$ die diesem R_P-Wert entsprechende Bad-Temperatur eingestellt (Schritt d) und der zugehörige Wert R_G2 registriert. Aus der Differenz $R_G2 - R_G1$ berechnet sich dann das gesuchte ΔT an der Probenoberfläche. Für Temperaturdifferenzen der Größe $\Delta T/T = 5 \cdot 10^{-2}$ ist die Meßgenauigkeit im ganzen Temperaturbereich besser als $\pm$ 2 % (siehe auch Abschnitt 4.3).

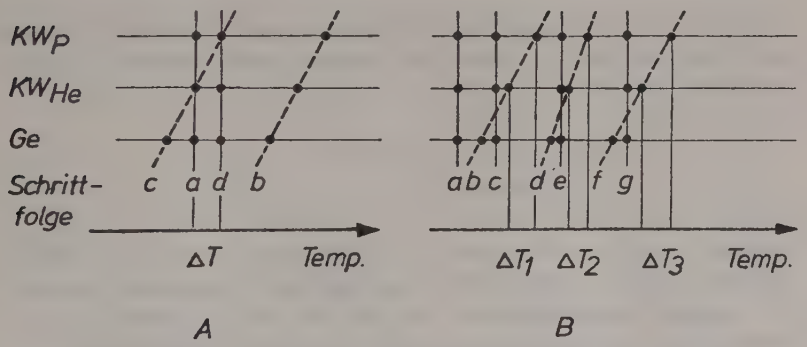


Abb. 3 Bestimmung der Temperaturdifferenz ΔT an der Probenoberfläche.

(---) : $\dot{Q} \neq 0$, (——) : $\dot{Q} = 0$.

Der Vorteil dieser Methode liegt darin, daß die Kohlewiderstände nicht kalibriert zu werden brauchen. Nachteilig ist, daß sich bestimmte Gleichgewichtszustände für $\dot{Q} = 0$ und $\dot{Q} \neq 0$ nur schwer reproduzieren lassen, weil die Einstellzeiten für die thermischen Gleichgewichte relativ groß sind (bei 1 K ca 1 h).

Zur Aufnahme von Meßreihen ist das in Abb. 3, B gezeigte Verfahren besser geeignet. Hier wird von der tiefsten bei $\dot{Q} = 0$ mit dem ^{3}He-Kryostaten erreichbaren Temperatur ausgegangen (Schritt a). Das nächste Wertetripel (Schritt b) wird bei eingeschalteter Heizung ($\dot{Q} \neq 0$) aufgenommen. Entsprechende Messungen wurden im Wechsel unter schrittweiser Erhöhung der ^{3}He-Bad-Temperatur ausgeführt (c/d, e/f, ...). Die Wertetripel für $\dot{Q} = 0$ dienen jeweils zur Kalibrierung der beiden Kohlewiderstände KW_P und KW_{He}. Die Kalibrierungspunkte werden so gewählt, daß sie in der Nähe der R_{He}- und R_P-Werte für $\dot{Q} \neq 0$ liegen. Das gesuchte ΔT ergibt sich dann als Differenz der mit den beiden Kohlewiderständen bei $\dot{Q} \neq 0$ gemessenen Temperaturen, die wie folgt berechnet werden.

Die Widerstand-Temperatur-Charakteristik der Kohlewiderstände wird ähnlich wie im Falle des Germaniumwiderstandes durch Polynome der Form

$$T^{-1} \log R = \sum_{n=o}^{N} A_n (\log R)^n \qquad (7)$$

ausgedrückt. Je nach Anzahl der Meßpunkte wird N = 2 oder 5 gesetzt. Durch Unterteilung des gesamten Temperaturbereichs in kleinere Intervalle ist es möglich, die relative Abweichung zwischen eingegebener und berechneter Temperatur

kleiner $\pm 5 \cdot 10^{-4}$ zu halten.

Die den Widerständen für die Messung zugeführte Leistung beträgt ca. 10^{-10} W. Mit dieser Leistung kann der Widerstand auf vier Stellen genau abgelesen werden, wobei die letzte Ziffer um $\pm$ 1 schwankt ($\hat{=}$ max. $\pm$ 0,1 %). Da die Empfindlichkeit der Kohlewiderstände größer (Faktor 3 bis 10) ist als die des Germaniumwiderstandes, wird die Genauigkeit der Temperaturmessung auch hier durch letzteren bestimmt.

Beide Verfahren liefern auch dann die richtigen Meßergebnisse, wenn die Anordnung bei $\dot{Q} = 0$ nicht isotherm ist, vorausgesetzt, die Änderungen des dann vorhandenen zusätzlichen Wärmestromes sind bei den einzelnen Meßschritten vernachlässigbar.

7 Meßergebnisse

Es wurde der Kapitza-Widerstand zwischen HeII und Kupfer, Blei, Aluminium und Nickel sowie zwischen flüssigem ^{3}He und Blei, Aluminium und Nickel im Temperaturbereich von 0,35 bis 1,4 K gemessen. Um sicherzustellen, daß R_K unabhängig von der Wärmestromdichte $\dot{q} = \dot{Q}/A$ ist, wurden die Linearität zwischen $\dot{q}$ und ΔT durch Messungen bei verschiedenen Temperaturen an den verschiedenen Systemen überprüft. In Anlehnung an die theoretischen Überlegungen werden die experimentellen Werte des Kapitza-Widerstandes durch Beziehungen der Form

$$R_K = A\, T^{-B}$$

angenähert, was auch den Vergleich mit anderen Meßergebnissen erleichtert. Hierbei und in den folgenden graphischen Darstellungen bezieht sich die angegebene Temperatur T immer auf die Temperatur des HeII oder des ^{3}He in der Meßzelle.

Die Oberflächenstruktur der Metalle wurde im Anschluß an die Wärmeübergangsmessungen mit einem Auflichtmikriskop und mit einem Rasterelektronenmikroskop untersucht. Die Rauhigkeiten konnten darüber hinaus beim Nickel nach dem Tastschnittverfahren, bei den anderen Metallen mit einem Lichtschnittmikroskop und einem Interferenzmikroskop festgestellt werden.

7.1 Metall - HeII

7.1.1 Kupfer

Für das System Kupfer/HeII liegen die meisten Untersuchungen vor. Insbesondere existieren hier auch sorgfältige Messungen unterhalb 1 K. Die Ergebnisse von Anderson, Conolly und Wheatley (ACW) [26] für 99,999 % reines Metall zählen zu den zuverlässigsten in diesem Temperaturbereich. Die Aufberei-

tung der Probe wurde deshalb im wesentlichen so durchgeführt, wie es diese Autoren beschrieben haben. Die vorliegenden Messungen dienen daher nicht nur dazu, die Güte der verwendeten Meßanordnung festzustellen, sondern sie geben auch Aufschluß über die Reproduzierbarkeit des Kapitza-Widerstandes an verschiedenen Proben des gleichen Materials.

Die gemessenen Kapitza-Widerstände sind in Abb. 4 zusammen mit den Ergebnissen von ACW eingetragen. Die Meßwerte konnten auch nach mehrmaligem Aufwärmen der Probe bis auf Raumtemperatur, wobei teilweise die Meßkammer mehrere Tage evakuiert ($1 \cdot 10^{-5}$ mbar) worden ist, innerhalb von $\pm$ 10 % reproduziert werden. Derartige Schwankungen wurden auch während einer Meßreihe, d. h. ohne drastische zwischenzeitliche Temperaturerhöhungen, beobachtet, obwohl die Meßgenauigkeit des einzelnen R_K-Wertes im allgemeinen besser als $\pm$ 5 % war. Zu kleine ΔT-Werte vergrößerten natürlich den Fehler vor allen Dingen bei den höheren Temperaturen. Die wesentliche Ursache für die beobachteten Streuungen dürfte aber darin liegen, daß bei der Ablesung der Meßgrößen kein stationäres thermischen Gleichgewicht vorlag.

Die Abb. 4 zeigt die gute Übereinstimmung der eigenen Resultate, die sich durch

$$R_K = (15 \pm 1)\, T^{-(4{,}1 \pm 0{,}1)}$$

beschreiben lassen, mit denen von ACW, für die $R_K = 12\, T^{-4}$ angegeben wird. Unterstrichen wird diese Übereinstimmung auch durch die Abb. 16 des Abschnittes 9, die weitere Ergebnisse anderer Autoren für das System Kupfer/HeII enthält.

Die vorliegenden Messungen bestätigen, daß die gewählte Meßanordnung zur Bestimmung des Kapitza-Widerstandes geeignet ist. Ferner machen sie deutlich, daß eine gleichartige Probenbehandlung innerhalb der angegebenen Streuungen zu reproduzierbaren Werten des Kapitza-Widerstandes führt,

sowohl bezüglich der Temperaturabhängigkeit als auch in der absoluten Größe.

Die in Abb. 4 gezeigten Werte beziehen sich bei beiden Proben auf die jeweilige gemessene Oberfläche, d. h. die Rauhigkeiten wurden nicht berücksichtigt. Daraus ergibt sich ein weiterer Aspekt. ACW geben für ihre Probe eine Rauhigkeit < 0,1 µm an. Dies entspricht optimalen Werten für das Elektropolieren. Dagegen hat die Untersuchung der hier vorliegenden, elektropolierten Metalloberfläche eine mittlere Rauhigkeit von 6 µm ergeben. In beiden Fällen ist die Wellenlänge der am meisten angeregten Phononen im Helium bei den hier interessierenden Temperaturen klein gegenüber den Rauhigkeiten, die dann eine größere, effektive Oberfläche für die Wärmeübertragung hervorrufen. Die unterschiedliche Rauhigkeit bei den beiden Proben führte offensichtlich nicht zu einer unterschiedlichen Vergrößerung der effektiven Oberfläche.

Die folgenden Abbildungen zeigen die Struktur der untersuchten Kupferoberfläche. Nach dem Tempern wurde der polykristalline Aufbau der Probe deutlich sichtbar. Die unterschiedliche Orientierung der Kristallite, deren mittlere Kantenlängen auf etwa 1 mm abgeschätzt werden, ist in Abb. 5 zu erkennen. Dadurch sind auch die Ätzstrukturen verschieden, die die elektrolytische Behandlung hervorgerufen hat. In Abb. 6 sieht man in vertikaler Richtung die Korngrenze zwischen zwei Kristalliten mit unterschiedlicher Oberflächenstruktur. Stereoaufnahmen von einer lamellenartigen Region mit dem Rasterelektronenmikroskop, die eine dreidimensionale Beobachtung erlauben, zeigen, daß diese terrassenförmig aufgebaut ist. Die relativ glatten Terrassenflächen haben stark strukturierte Flanken, deren Höhe der gemessenen Rauhtiefe von 6 µm entspricht (siehe Abb. 7).

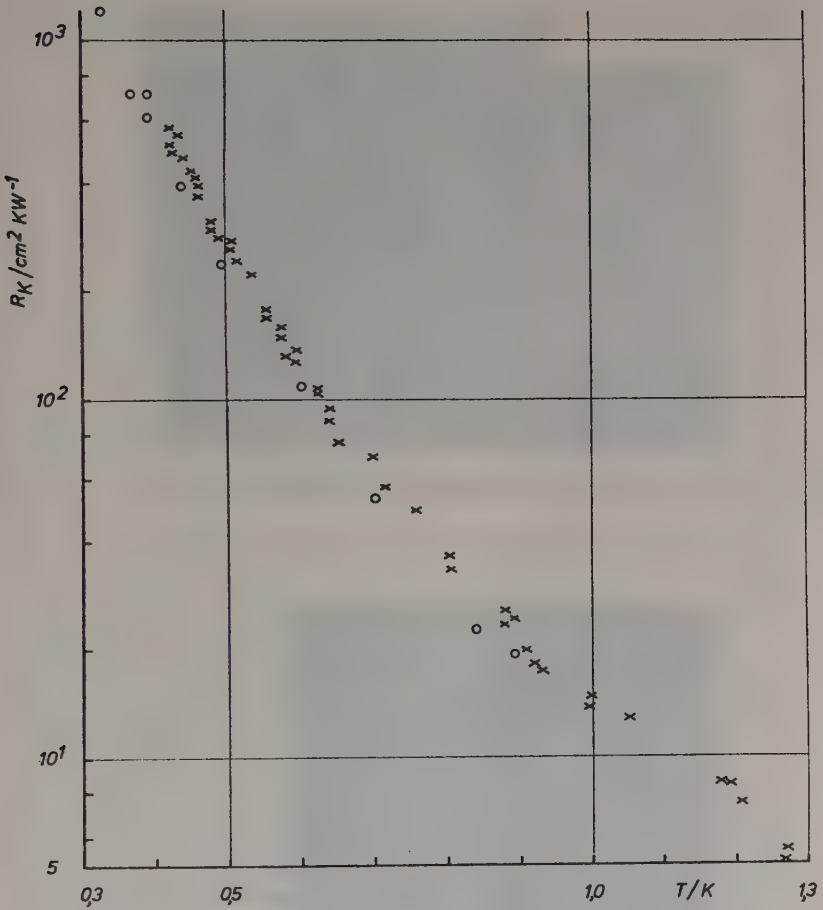


Abb.4 Kapitzawiderstand zwischen Kupfer und He II.
(o) nach Anderson, Conolly und Wheatley [26].
(x) eigene Meßwerte.

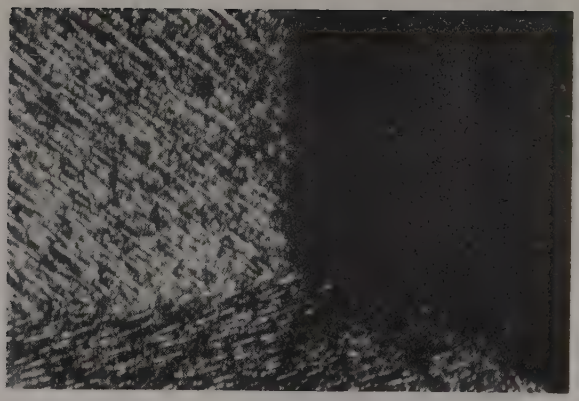
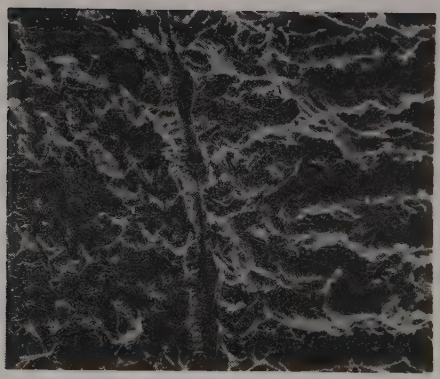


Abb. 5 Oberfläche der Kupferprobe. 200fach.



10 µm

Abb. 6 Oberfläche der Kupferprobe. 880 fach.
Korngrenze zwischen zwei Kristalliten
mit unterschiedlicher Ätzstruktur.

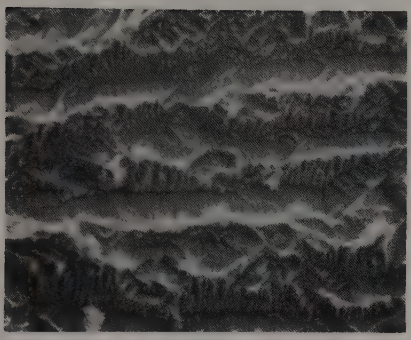


Abb. 7 Oberfläche der Kupferprobe. 1850fach. Terrassenförmige Ätzstruktur.

An der Kupferprobe wurde auch die Wärmeübertragung an ^{4}He-Gas untersucht. Dies diente dazu, den Einfluß einer durch van der Waals-Kräfte an der Oberfläche gebundenen Heliumschicht deutlich zu machen. Ferner sollte festgestellt werden, in welcher Weise sich der Kapitza-Widerstand an flüssiges Helium ändert, wenn die Meßzelle nicht vollständig mit Flüssigkeit gefüllt ist.

Der Fülldruck des Gasvolumens betrug bei 1,3 K etwa 10^{-1} Torr, d. h. er lag deutlich unterhalb des Sättigungsdampfdruckes von 1,2 Torr. Die gemessenen Wärmewiderstände lagen bei 0,5 K eine Größenordnung höher als die für flüssiges Helium und zeigten eine wesentlich größere Temperaturabhängigkeit. Mit zunehmender Temperatur näherten sich die Werte denen für die Flüssigkeit an. Oberhalb von 0,6 K wurde R_K schließlich unabhängig davon, ob die Meßkammer mit Gas oder mit Flüssigkeit gefüllt war.

Diese Beobachtungen lassen sich deuten, wenn die adsorbierte

Heliumschicht bei der Wärmeübertragung berücksichtigt wird. Der thermische Widerstand setzt sich dann zusammen aus den Widerständen an den Grenzflächen zwischen dem Festkörper und der Heliumschicht und zwischen dieser und dem Gas. Der Schicht-Gas-Widerstand hängt von dem Transportvermögen des Gases ab, d. h. von der Anzahl der vorhandenen Atome. Mit abnehmender Temperatur bzw. abnehmendem Druck nimmt dieser Wärmewiderstand zu. Bei höherer Temperatur, wenn der Gasdruck in der Nähe des Gleichgewichtsdampfdruckes gehalten wird, ist dieser Widerstand vernachlässigbar. Daraus folgt, daß der Kapitza-Widerstand zwischen Festkörper und Flüssigkeit ebenso groß ist wie zwischen Festkörper und adsorbierter Schicht. Dieser Sachverhalt ergibt sich auch aus anderen Experimenten, in denen direkt der Reflexionskoeffizient von Phononen in Abhängigkeit von der Schichtdicke gemessen worden ist [27, 28]. Ferner geht daraus hervor, daß bei der hier gewählten Meßanordnung der Kapitza-Widerstand durch ein unterschiedliches Flüssigkeitsniveau nicht beeinflußt wird.

7.1.2 Blei

Blei ist für die Untersuchung des Kapitza-Widerstandes von besonderem Interesse, einmal als Modellsubstanz für Supraleiter 1. Art, zum anderen wegen seiner metallurgischen Eigenschaften. Kristallfehler können in einfacher Weise durch Tempern ausgeheilt bzw. durch Verformung erzeugt werden. Ferner können die Oberflächeneigenschaften durch Bildung von Oxidschichten leicht verändert werden. Dementsprechend ist der Kapitza-Widerstand von Blei schon verhältnismäßig oft untersucht worden, jedoch nur bei Temperaturen $T > 1{,}2$ K.

Für die vorliegenden Untersuchungen wurde Blei wegen seiner niedrigen Debye-Temperatur ausgewählt, um die Festkörperparameter der insgesamt verwendeten Metalle möglichst weit zu variieren. Die Untersuchungen beschränkten sich auf den supraleitenden Zustand, da die freien Elektronen im Metall

nur einen relativ kleinen oder möglicherweise überhaupt keinen Einfluß auf den Kapitza-Widerstand haben.

Die experimentellen Ergebnisse zeigt Abb. 8 zusammen mit den Werten für die anderen Metalle. Auch hier konnten die Werte nach mehreren Kalt-Warm-Zyklen reproduziert werden. In qualitativer Übereinstimmung mit der AM-Theorie sind die gemessenen Werte des Widerstandes für Pb am niedrigsten. Die Temperaturabhängigkeit von R_K ist nicht so einheitlich wie im Falle des Kupfers und auch der anderen hier untersuchten Metalle. Dies wird besonders deutlich in Abb. 9. Dort ist $R_K T^3$ gegen T aufgetragen, wodurch der größte Teil der Temperaturabhängigkeit eliminiert wird. Bei 0,7 K erkennt man einen Wendepunkt. Unterhalb dieser Temperatur nähert sich R_K der T^{-3}-Abhängigkeit an. Mittlere Ausdrücke für den Kapitza-Widerstand sind

$$R_K = 10 \; T^{-3,4} \quad \text{bei } T = 0,5 \text{ K}$$

und

$$R_K = 5 \; T^{-4,0} \quad \text{bei } T = 1 \text{ K}.$$

Die Oberflächenbeschaffenheit der Bleiprobe ist ähnlich wie bei der Kupferprobe. Ebenso wie dort zeigt sich beim Blei der polykristalline Aufbau. Die Oberflächen der einzelnen Kristallite sind jedoch wesentlich größer; sie erreichen Ausmaße von 0,1 bis 0,3 cm^2. Das elektrolytische Abtragen der Oberflächenschicht von 100 µm hinterließ eine Ätzstruktur ähnlich einer Apfelsinenschale, die in Abb. 10 gut zu erkennen ist. Die mittlere Rauhigkeit betrug hier etwa 2 µm.

7.1.3 Aluminium

Die einzigen bisher bekannten Messungen an Reinstaluminium sind die von Mittag [29] im Temperaturbereich von 1,3 bis 2,1 K. Da Aluminium bei 1,19 K in den supraleitenden Zustand übergeht, läßt sich hier der Kapitza-Widerstand beim Wechsel der Leitungszustände beobachten, ohne ein zusätzliches Magnetfeld anwenden zu müssen.

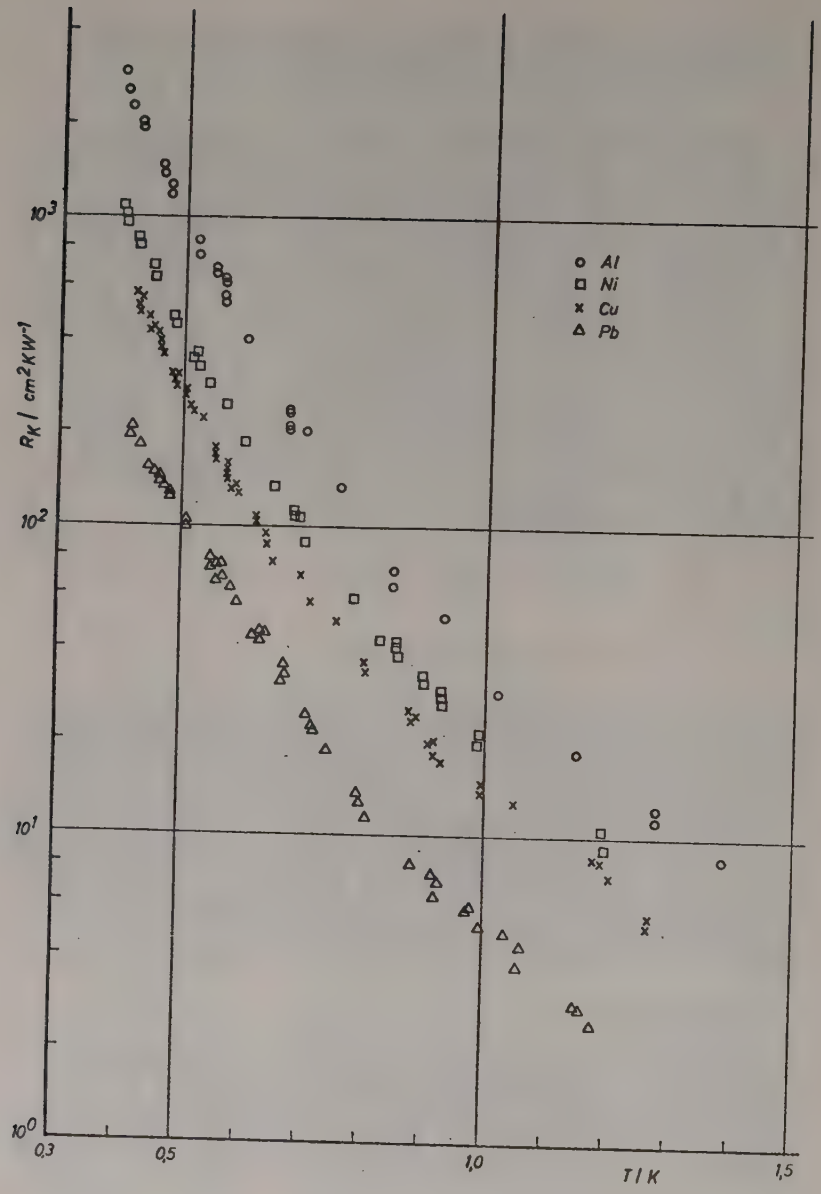


Abb.8 Kapitza-Widerstand zwischen Metall und He II.

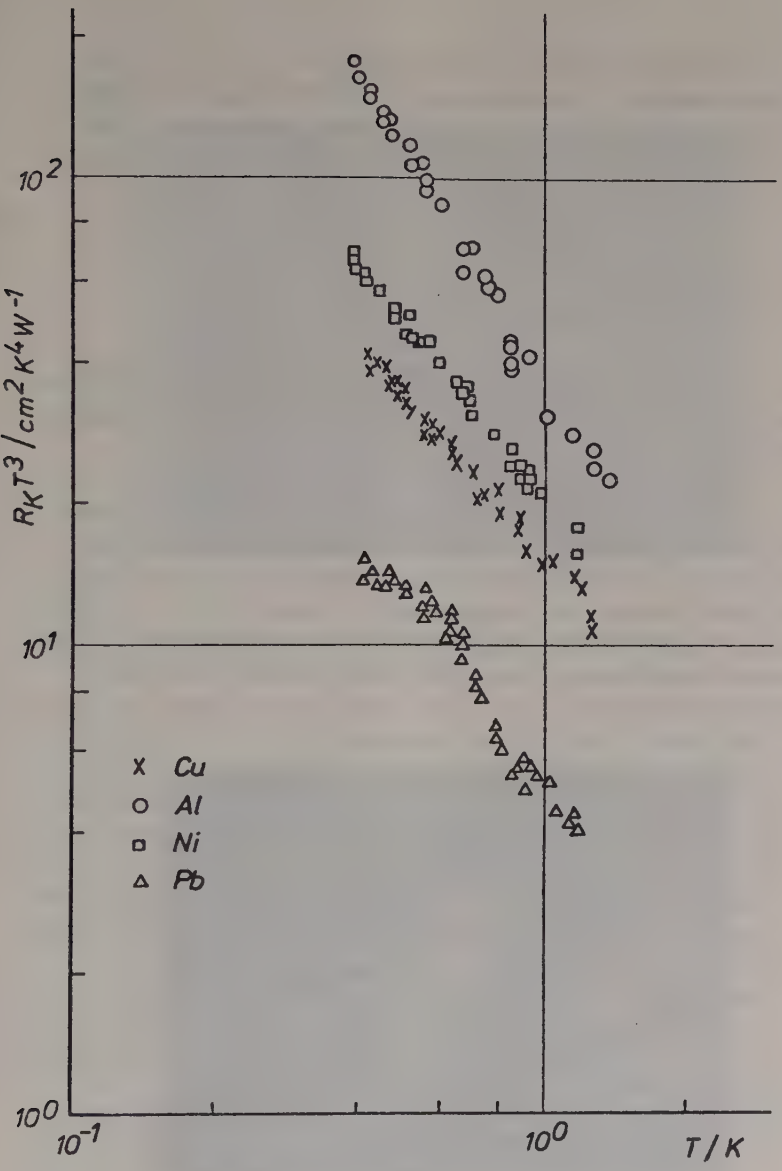


Abb.9 Kapitza-Widerstand zwischen Metall und HeII.

Die ermittelten Kapitza-Widerstände sind in Abb. 8 und 9 wiedergegeben. Beim Durchlaufen der Übergangstemperatur T_c konnte keine Änderung der Temperaturabhängigkeit von R_K festgestellt werden. Aluminium weist einen der höchsten bisher bekannten Kapitza-Widerstände auf.

Der empirische Zusammenhang lautet hier

$$R_K = (37 \pm 1)\ T^{(-4,6 \pm 0,1)}.$$

Die Oberfläche der Aluminiumprobe ist hochglänzend und erscheint auch unter dem Mikroskop optisch glatt. Die Bestimmung der Rauhtiefe ergab Werte < 0,1 µm.

Einzelne Krater und Unregelmäßigkeiten auf der Oberfläche, die sich trotz ständiger Durchmischung des Elektrolyten während des Polierens bildeten, können bei der Ermittlung der Oberflächengröße vernachlässigt werden. Abb. 11 zeigt einen charakteristischen Ausschnitt der Oberfläche in 400-facher Vergrößerung. Erkennbar sind in dieser Abb. auch einige Korngrenzen. Für die mittlere Kantenlänge der Krystallite wurden 0,2 bis 0,3 mm abgeschätzt.

Abb. 10 Oberfläche der Bleiprobe. 160 fach.

Abb. 11 Oberfläche der Aluminiumprobe. 400 fach.

7.1.4 Nickel

Nickel hat von den hier untersuchten Metallen die höchste Debye-Temperatur. Die Meßergebnisse von [30] und [31] für Temperaturen T > 1 K sind widersprüchlich, so daß die hier durchgeführten Messungen auch zur Klärung der in diesen Arbeiten aufgeworfenen Fragen und Hypothesen dienen können.

Während für Pb, Cu und Al der Kapitza-Widerstand mit der Debye-Temperatur zunimmt, lassen sich die Meßwerte für Nickel nicht in diese Reihenfolge einordnen.

Die Meßergebnisse (s. Abb. 8 und 9) liegen zwischen den Werten für Kupfer und Aluminium auf einer Kurve

$$R_K = (20{,}5 \pm 1)\, T^{-(4{,}25 \pm 0{,}1)}.$$

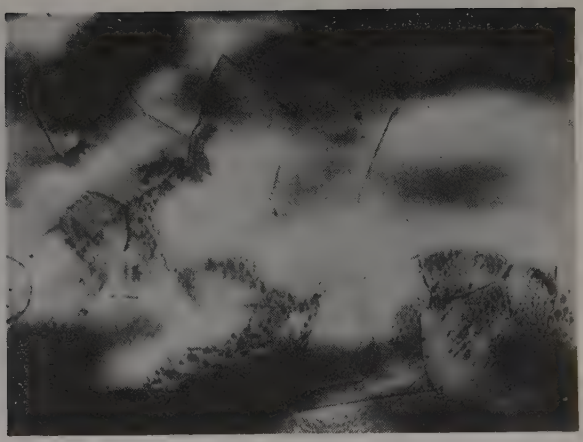


Abb. 12 Oberfläche der Nickelprobe. 160fach.

Wie Abb. 12 veranschaulicht, ist die Nickeloberfläche nicht einheitlich. Zwar sind große Teile relativ glatt mit einer Rauhtiefe ≤ 0,5 µm, daneben gibt es aber unregelmäßige, nicht durch die Korngrenzen festgelegte Bereiche mit einer charakteristischen Ätzstruktur. Die mittlere Rauhigkeit in diesen Zonen ist 4 µm. Die relativ große mechanische Härte des Nikkels ermöglichte es, mit dem Tastschnittverfahren das Oberflächenprofil längs einer Mantellinie graphisch darzustellen. Erfaßt wurde damit die in der Abb. 12 durch Schatten markierte Welligkeit der Oberfläche, nicht jedoch das Profil der angeätzten Oberflächenbereiche. Da die Länge der welligen Unebenheiten groß ist gegen ihre Höhe, tragen sie bei der gegebenen Meßgenauigkeit nicht zu einer Vergrößerung der effektiven Wärmeübertragungsfläche bei.

7.2 Metall - flüssiges ^{3}He

Die Messung des Kapitza-Widerstandes stößt beim flüssigen ^{3}He auf zusätzliche experimentelle Schwierigkeiten, zumindest bei Temperaturen oberhalb 0,2 K. Dies ist dadurch bedingt, daß der relativ große Wärmewiderstand innerhalb des flüssigen ^{3}He mit R_K in Serie liegt. Die Temperatur an der Grenzfläche muß bei stationären Temperaturgradienten in der Flüssigkeit extrapoliert werden. Hydrodynamische Vorgänge verfälschen die Extrapolation und bestimmen schließlich mit wachsender Wärmestromdichte die Wärmeübertragung an die Flüssigkeit [32]. Wichtigstes Kriterium für derartige Mechanismen ist die Nichtlinearität zwischen der Wärmestromdichte $\dot{q}$ und der Temperaturdifferenz an der Oberfläche; $\dot{q} = A\ \Delta T^x$, $x \neq 1$. Darauf wird am Ende dieses Kapitels ausführlicher eingegangen. Es sei erwähnt, daß aufgrund der hohen spezifischen Wärme und des hohen thermischen Widerstandes des flüssigen ^{3}He die Einstellzeiten für thermische Gleichgewichte natürlich länger sind als im Falle des HeII.

Die Messungen des Kapitza-Widerstandes zwischen flüssigem ^{3}He und den Metallen Blei, Nickel und Aluminium wurden mit dem gleichen Meßsystem jeweils unmittelbar im Anschluß an die Messungen mit HeII durchgeführt. Der Temperaturbereich erstreckte sich von 0,35 bis 1,1 K. Der Druck über der Flüssigkeit betrug einige mbar.

Die Reinheit des ^{3}He-Gases wurde mit einem Massenspektrometer gesondert gemessen. Die ^{4}He-Verunreinigung war kleiner als 0,3 Mol % (Herstellerangabe 0,2 %).

Das Austauschen des Gases geschah jeweils bei Raumtemperatur. Dabei wurde das Meßsystem mit dem anderen Gas mehrmals gespült und vor dem endgültigen Füllen mindestens 24 Stunden evakuiert (10^{-5} mbar).

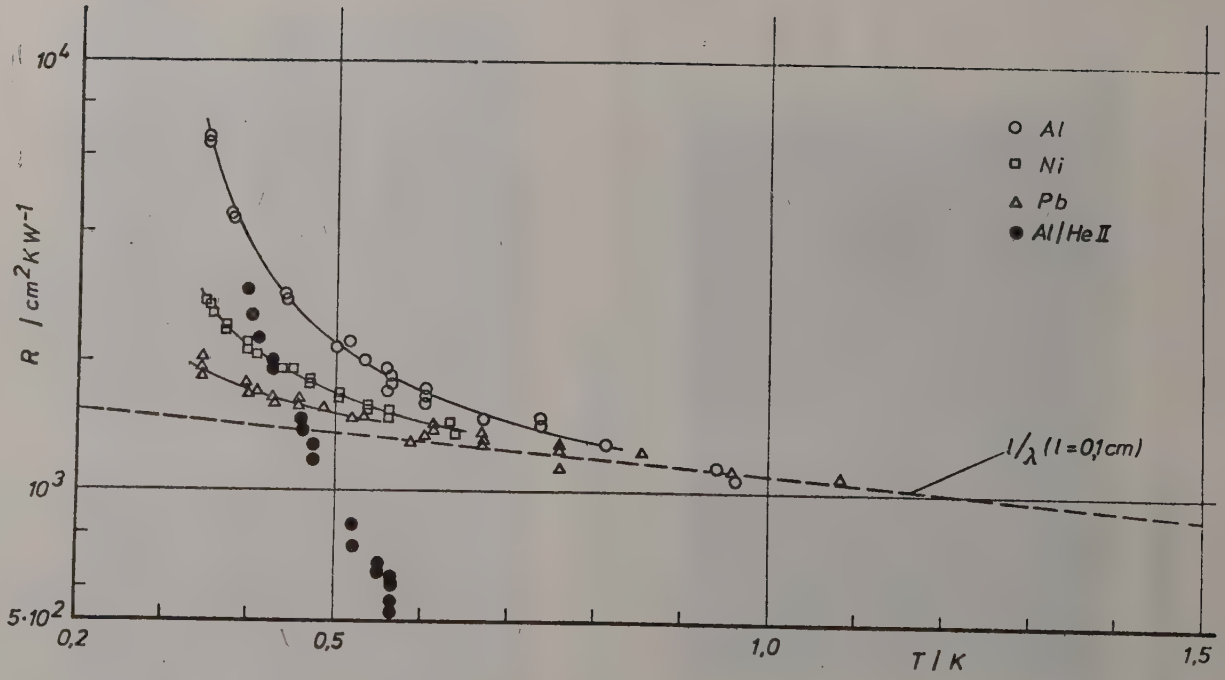


Abb.13 Kapitza-Widerstand zwischen Metall und flüssigem ^3He.
(---) Wärmewiderstand innerhalb der Flüssigkeit.

Die gemessenen Gesamtwärmewiderstände R finden sich in der halblogarithmischen Darstellung der Abb. 13 wieder. Zur Orientierung sind zusätzlich die Meßwerte für Al/HeII aus Abb. 8 eingezeichnet. Die Streuung der Meßpunkte übersteigt nur in wenigen Fällen den Wert von ± 5 %. Der Gesamtwärmewiderstand R setzt sich, wie schon erwähnt, aus dem Kapitza-Widerstand und dem thermischen Widerstand innerhalb des ^{3}He zusammen:

$$R = R_K + R_{He} = R_K + l/\lambda$$

Es bedeuten λ die Wärmeleitfähigkeit des ^{3}He und l die Entfernung zwischen Oberfläche und Meßfühler. Die Mittelachse des Kohlewiderstandes befand sich in der Mitte des 0,2 cm dicken Flüssigkeitsringes um die Probe (s. Abb. 1). Es wurde daher für alle Proben l = 0,1 cm gesetzt. Mit den Werten für die Wärmeleitfähigkeit des flüssigen ^{3}He nach [33, 34] erhält man die in Abb. 13 gestrichelt eingezeichnete Kurve $1/\lambda$.

Mit zunehmender Temperatur nähern sich alle Wärmewiderstände R der Kurve $1/\lambda$ (l = 0,1 cm) an. Die Bestimmung von R_K ist daher nur am unteren Ende des hier untersuchten Temperaturbereichs sinnvoll. Die durch Differenzbildung erzielten Werte für R_K sind in Abb. 14 eingetragen. Die durchgezogenen Linien sind Ausgleichskurven durch die Meßpunkte für HeII.

Man sieht, daß beim Aluminium kein Unterschied zwischen den HeII und ^{3}He-Werten besteht. Der Kapitza-Widerstand des Systems Ni/^{3}He ist um 20 bis 30 % kleiner als der von Ni/HeII. Ferner ist die Temperaturabhängigkeit etwas geringer:

$$R_K = (23 \pm 2)\ T^{-(3,8 \pm 0,3)}.$$

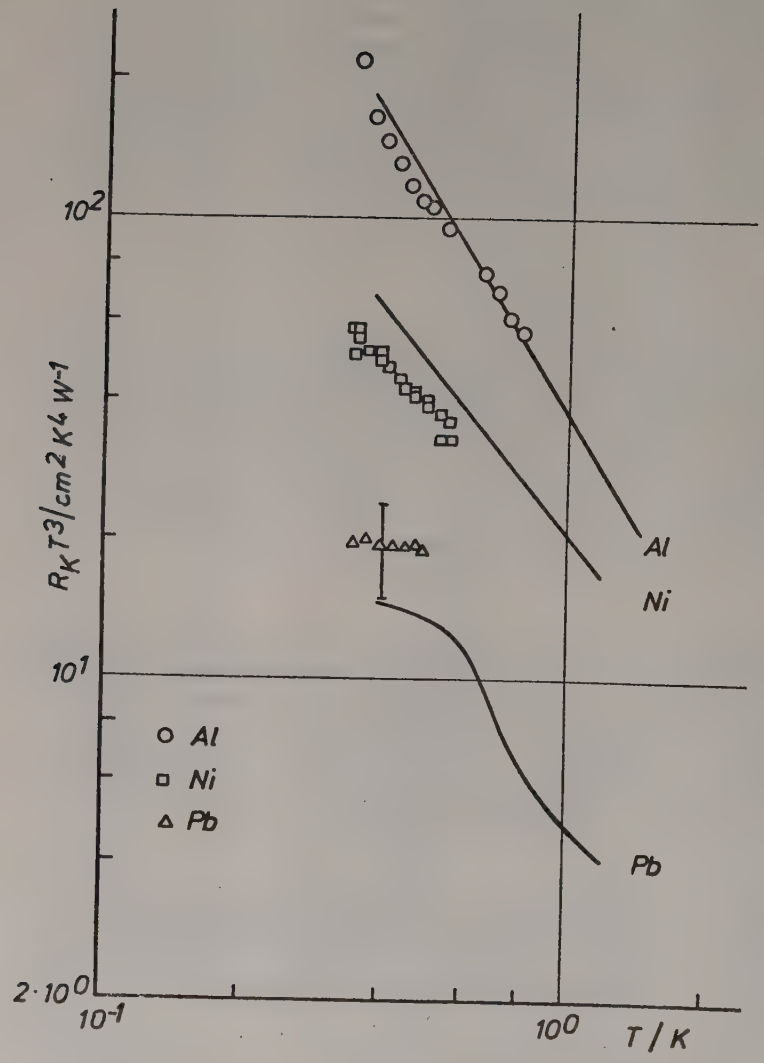


Abb.14 Korrigierte Werte für den Kapitza-Widerstand zwischen Metall und flüssigem ^{3}He. Die ausgezogenen Kurven kennzeichnen die Messungen an HeII.

Für Blei ergeben sich dagegen in ^{3}He um 30 bis 40 % höhere Werte für R_K als in HeII. Es muß allerdings berücksichtigt werden, daß Schwankungen des Gesamtwärmewiderstandes von $\pm$ 5 % bei den hier gegebenen relativ kleinen R_K-Werten zu einem Fehler von $\pm$ 30 % führen. Innerhalb dieser Fehlergrenzen überlappen sich die Ergebnisse für ^{3}He und ^{4}He. Für die ^{3}He-Mittelwerte gilt

$$R_K = 17\ T^{-3,1}.$$

Tabelle 3 faßt die experimentellen Ergebnisse, ausgedrückt durch Näherungen $R_K = A\ T^{-B}$ zusammen. Eine die angegebenen Fehlergrenzen übersteigende Differenz zwischen den HeII- und ^{3}He-Daten läßt sich nicht feststellen. In der aufgeführten Reihenfolge der Metalle nehmen sowohl der Faktor A als auch der Betrag des Temperaturexponenten B zu.

Tabelle 3

Kapitza-Widerstand in der Form $R_K = A\ T^{-B}$, $\left[R_K\right] = cm^2\ K\ W^{-1}$

Metall	Helium	Temperatur-bereich [K]	A	B
Pb	HeII	um 0,5	10	3,4
Pb	HeII	um 1	5	4,0
Pb	^{3}He	um 0,4	17	3,1
Cu	HeII	0,4 - 1,3	15 $\pm$ 1	4,1 $\pm$ 0,1
Ni	HeII	0,4 - 1,2	20,5 $\pm$ 1	4,25 $\pm$ 0,1
Ni	^{3}He	0,35 - 0,6	23 $\pm$ 2	3,8 $\pm$ 0,3
Al	HeII	0,4 - 1,4	37 $\pm$ 1	4,6 $\pm$ 0,1
Al	^{3}He	0,35 - 0,8	37 $\pm$ 1	4,6 $\pm$ 0,1

7.3 Abhängigkeit des Temperatursprunges von der Wärmestromdichte

Die beschriebenen Meßergebnisse sowohl für ^{3}He als auch für HeII basieren auf der Definitionsgleichung $R_K = \Delta T\, \dot{q}^{-1}$ des Kapitza-Widerstandes. Voraussetzung ist, daß $\Delta T << T$ und daß R_K nicht von der Wärmestromdichte $\dot{q}$ abhängt.

Die erste Bedingung läßt sich abschwächen, wenn man die Auswertung entsprechend modifiziert. Bei den theoretischen Betrachtungen wurde von der Entwicklung des Temperaturfaktors $(T_1^4 - T_2^4) = (T + \Delta T)^4 - T^4$ nur der erste, in ΔT lineare Term berücksichtigt. Weitere Glieder liefern Korrekturen für den Kapitza-Widerstand

$$R_K = R_K^{\,o} \left[1 + \frac{3}{2} \frac{\Delta T}{T} + \left(\frac{\Delta T}{T} \right)^2 + \ldots \right]^{-1} .$$

Abweichungen von dieser Entwicklung findet man bei HeII erst, wenn die Oberflächentemperatur die Lambda-Temperatur (T_λ) erreicht, d.h. wenn $\Delta T \geq T_\lambda - T_{He}$ [35]. Die Wärmeübertragung an das normalfluide ^{3}He kann dagegen durch Konvektion und Blasensieden beeinflußt werden. In dem hier interessierenden Temperatur- und Druckbereich hat allerdings flüssiges ^{3}He bei 0,5 bis 0,6 K ein Maximum in der Dichte ($d\rho/dT = 0$). Es gibt hier also keine nennenswerte Konvektion innerhalb der Flüssigkeit, die eine Erhöhung des Wärmetransportes bewirken könnte. Für das praktische Arbeiten mit flüssigem ^{3}He ist dieser Effekt natürlich von Nachteil. Bei der Bestimmung des Kapitza-Widerstandes ist er jedoch von Vorteil, da sich dadurch im ^{3}He stationäre Temperaturgradienten ausbilden können. Gleichzeitig ist die mittlere freie Weglänge der Phononen klein gegenüber den Gefäßdimensionen, so daß bei genügend kleinen Wärmestromdichten eine Extrapolation der Oberflächentemperatur durchführbar ist.

Um zu überprüfen, ob unerwünschte Effekte die Messung verfälschen, und um festzustellen, wie die Meßdaten auszuwerten sind, wurde die Temperaturdifferenz an der Grenzfläche in Abhängigkeit von der Wärmestromdichte bei verschiedenen Temperaturen gemessen. Die Abbildungen 15a und 15b zeigen einige der Ergebnisse, die einen größeren Bereich überstreichen. Die Wärmestromdichten wurden von 1 $\mu W/cm^2$ bis $2 \cdot 10^3$ $\mu W/cm^2$ variiert. Die höchsten Wärmestromdichten waren beim System Pb/HeII am oberen Ende des Temperaturbereiches notwendig, um ein genügend großes ΔT zu erzeugen. Alle Meßpunkte, die zu einer bestimmten Temperatur gehören, lassen sich durch Geraden verbinden, die durch den Ursprung des Koordinatensystems gehen. Bei den ^{3}He-Messungen ist der Temperaturgradient innerhalb der Flüssigkeit mit erfaßt. Da auch für die Wärmeleitung $\dot{q} \approx \Delta T$ gilt, ergeben sich auch in diesem Fall Geraden.

Diese Ergebnisse zeigen, daß die bei den Experimenten verwendeten Wärmestromdichten innerhalb des Gültigkeitsbereichs der Definitionsgleichung für R_K liegen, so daß deren Anwendung gerechtfertigt ist.

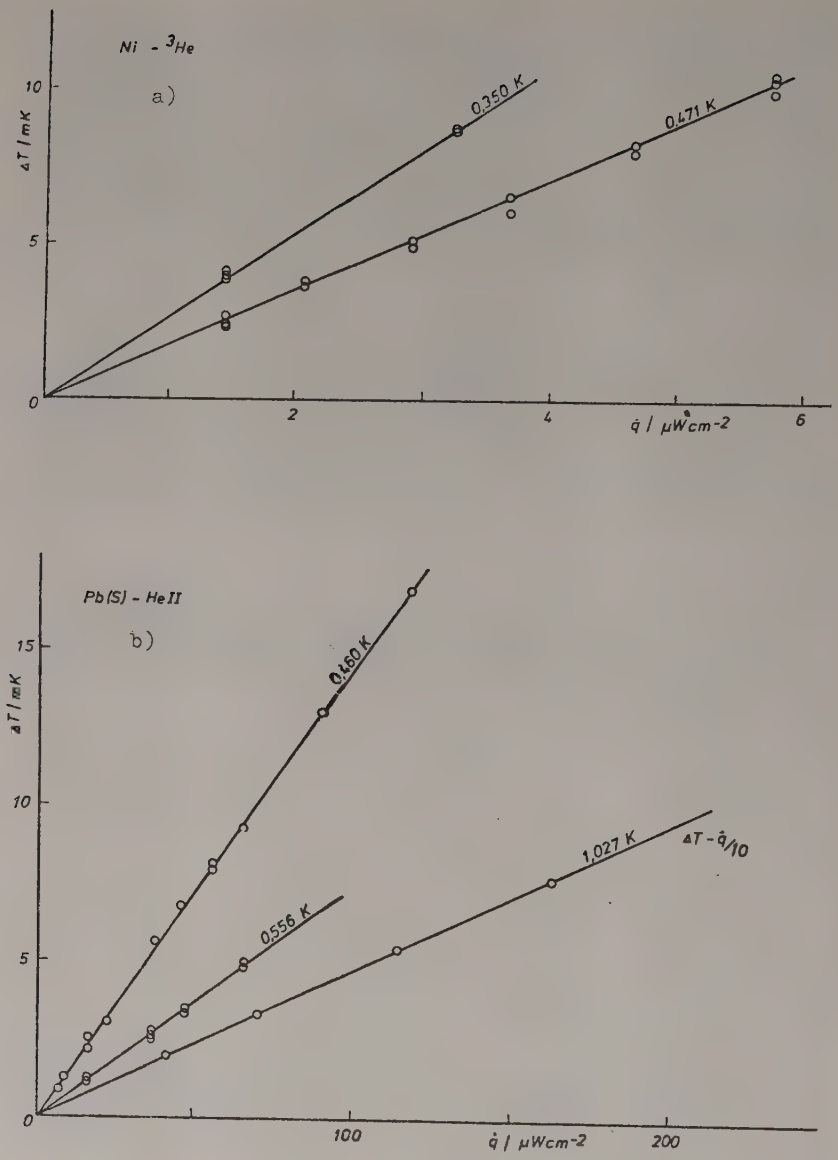


Abb.15 Abhängigkeit des Temperatursprunges an der Grenzfläche von der Wärmestromdichte.

8 Fehlerbetrachtung

Die verwendete Meßanordnung ermöglicht die Erfassung einer Gesamttemperaturdifferenz ΔT_{Gesamt} zwischen dem Temperaturmeßfühler in der Probe und dem in der Flüssigkeit. ΔT_{Gesamt} setzt sich zusammen aus den Temperaturgradienten innerhalb der beiden Medien (ΔT_M im Metall und ΔT_{He} im Helium) und dem Temperatursprung (ΔT_K) an der Oberfläche:

$$\Delta T_{Gesamt} = \Delta T_M + \Delta T_K + \Delta T_{He} \ .$$

Daraus ergibt sich ein Gesamtwärmewiderstand $R = \Delta T_{Gesamt}/\dot{q}$. Gemäß der Definitionsgleichung für die Wärmeleitfähigkeit eines isotropen Mediums, $\lambda = \dot{q}\ \Delta x/\Delta T$, läßt sich R schreiben als Summe der verschiedenen Wärmewiderstände:

$$R = (\Delta x/\lambda)_M + R_K + (\Delta x/\lambda)_{He} = R_M + R_K + R_{He} \ .$$

Dabei ist zu beachten, daß die mittlere freie Weglänge der Energieträger in den Medien kleiner ist als entsprechende Abstände Δx der Meßgeometrie.

Voraussetzung für die Konzeption der Meßanordnung ist nun, daß die Summanden $R_{M,He}$ klein sind gegenüber dem Beitrag von R_K, d.h. $R \approx R_K$.

Wie im vorangegangenen Abschnitt dargelegt, trifft diese Voraussetzung für flüssiges ^3He hier nicht zu. Dagegen erreicht das superfluide ^4He bei 1,9 K die höchste überhaupt bekannte Wärmeleitfähigkeit. Bei genügend tiefen Temperaturen ($T \leq 0{,}7$ K) sind aber nur noch longitudinale Phononen angeregt, so daß sich die Wärmeleitfähigkeit ebenso wie in einem homogenen dielektrischen Festkörper verhält: $\lambda = \frac{1}{3} C\ v\ l$. C ist die spezifische Wärme pro Volumeneinheit, v die Schallgeschwindigkeit und l die mittlere freie Weglänge der Phononen. Letztere nimmt sehr rasch mit abnehmender Temperatur zu [36], so daß bei Temperaturen < 1 K die Phononen schließlich

nur noch an den Grenzflächen des Heliumvolumens gestreut werden. Für eine mit Helium gefüllte Kapillare mit dem Durchmesser d wird dann z. B. $\lambda = \frac{1}{3} C v d \approx 30 d T^3$ [37]. Experimentell findet man für λ etwas größere Werte [38]. Spiegelreflexionen bewirken eine über die charakteristische Länge d hinausreichende effektive mittlere freie Weglänge.

Zur Abschätzung des Korrekturgliedes R_{He} wird λ nach der obigen Beziehung berechnet, wobei d hier die Dicke der Heliumschicht ist. Der Abstand Δx zwischen Oberfläche und Mittelachse des Meßfühlers beträgt etwa 0,1 cm. Damit ergibt sich für das Verhältnis von R_{He} zu den niedrigsten gemessenen Gesamtwärmewiderständen R (im Falle des Bleis) ein Wert von $1 \cdot 10^{-3}$ im Temperaturbereich $\leq 0{,}6$ K. Bei höheren Temperaturen nimmt die Wärmeleitfähigkeit rasch zu und entsprechend verringert sich der Beitrag von R_{He}, so daß insgesamt dieser Wärmewiderstand bei den hier beschriebenen Messungen nicht ins Gewicht fällt.

Der Beitrag von R_M für die normalleitenden Metalle Cu, Ni und Al (oberhalb von 1,19 K) soll nun abgeschätzt werden. Bei Temperaturen < 10 K wird die Wärmeleitfähigkeit durch die Streuung der Leitungselektronen an statischen Defekten wie Unreinheiten und Gitterfehlern bestimmt. Damit wird die mittlere freie Weglänge l_e der Elektronen temperaturunabhängig. Die De-Broglie-Wellenlänge der Leitungselektronen ist von der Temperatur unabhängig und sehr viel kleiner als l_e. Nach der oben eingeführten kinetischen Formel für die Wärmeleitfähigkeit erhält man für λ eine lineare Temperaturabhängigkeit, die auch experimentell bei diesen Festkörpern gefunden wird.

Der Abstand Δx zwischen der Probenoberfläche und der Mittelachse des Temperaturmeßfühlers beträgt etwa 0,1 cm. Für den Quotienten δ aus R_M und dem gemessenen Gesamtwiderstand R ergeben sich dann die in der folgenden Tabelle aufgeführten Werte.

Tabelle 4

Verhältnis des Wärmewiderstandes im Metall zum gemessenen Gesamtwärmewiderstand.

Metall	δ (bei 1,2 K)	δ (bei 0,4 K)
Cu	$1 \cdot 10^{-2}$	$2 \cdot 10^{-4}$
Ni	$2 \cdot 10^{-2}$	$5 \cdot 10^{-4}$
Al	$1 \cdot 10^{-3}$	-

Die Werte für die Wärmeleitfähigkeit der getemperten Metalle Kupfer und Aluminium mit einer Reinheit von 99,999 % sind den Literaturzitaten [39], [40] und [41] entnommen und für Nickel mit einer geringeren Reinheit aus [31].

Die Wärmeleitfähigkeit von Metallen im supraleitenden Zustand zeigt ein wesentlich anderes Verhalten als im normalleitenden. Supraleiter mit schwacher Wechselwirkung, wie z. B. Aluminium, bei denen die kritische Temperatur im Bereich λ (N = normalleitend) $\approx$ T liegt, haben zunächst eine exponentiell mit der Temperatur abnehmende Wärmeleitfähigkeit, λ (S) = A $e^{-BT_c/T}$. Blei dagegen als Supraleiter mit starker Wechselwirkung hat die Sprungtemperatur T_c in einem Bereich, in dem die Wärmeleitfähigkeit durch Elektron-Phonon-Streuprozesse begrenzt wird. λ (S) zeigt daher in der Nähe von T_c ein kompliziertes Verhalten mit relativen Maxima und Minima. Bei Temperaturen $T < T_c/5$, bei denen kaum noch normalleitende Elektronen vorhanden sind, geschieht die Wärmeleitung schließlich durch Phononen, so daß wie im Dielektrikum die Wärmeleitfähigkeit λ (S) $\approx T^3$ und ebenfalls von der Probengeometrie abhängig wird.

Im Falle des Aluminiums ist dieser Bereich bei den hier interessierenden Temperaturen noch nicht erreicht. Nach [41] ist λ (S) / λ (N) = 0,2 bei T = 0,4 K. Wir erhalten mit den

λ (N)-Werten aus [39] und [41] für den Quotienten δ die Abschätzung $\delta < 5 \cdot 10^{-5}$.

Unterhalb von 1,4 K ist der elektronische Anteil der Wärmeleitfähigkeit von supraleitendem Pb vernachlässigbar [42]. Nun beträgt die mittlere freie Weglänge der Phononen im Blei bei 1 K etwa 0,7 mm und bei 0,4 K schon ca. 3 mm. Das ist von der gleichen Größenordnung wie der Abstand Δx zwischen Oberfläche und Mittelachse des Meßfühlers, $\Delta x \approx 1$ mm. Die Extrapolation der Temperatur ist daher nicht eindeutig. Prinzipiell kann für $l > d$ der Meßfühler tatsächlich die mittlere Oberflächentemperatur anzeigen. Trotzdem soll mit den λ (S)-Werten für getempertes, polykristallines 99,999 % reines Blei nach [42] das Korrekturglied abgeschätzt werden. Für Temperaturen zwischen 1 K und 0,4 K ergeben sich Werte $\delta \leq 7 \cdot 10^{-2}$. Wegen der prinzipiellen Unsicherheit der Extrapolation und da die Streuung der Meßpunkte bei $\pm$ 10 % liegt, wird auf eine Korrektur verzichtet. Sie bedeutet ohnehin nur eine relativ geringe Parallelverschiebung.

Bei der Bestimmung der Probenoberfläche A und des in der Probe erzeugten Wärmestromes $\dot{Q}$ ergeben sich weitere systematische Fehler, die jedoch im Vergleich zu den beobachteten statistischen Streuungen der Meßwerte vernachlässigbar sind.

Die Verkleinerung der Oberfläche durch thermische Kontraktion hat im Falle des Bleis, das von den hier untersuchten Metallen den größten linearen Ausdehnungskoeffizienten und die höchste Poisson-Zahl hat, eine maximale, systematische Abweichung von - 1 % zur Folge. Der mittlere quadratische Fehler für die bei Raumtemperatur gemessene Oberfläche beträgt $\pm$ 0,4 %. Der Einfluß der Rauhigkeiten wurde bereits im vorangegangenen Abschnitt angesprochen.

Für die Wärmestromdichte $\dot{Q}$ ist aufgrund der Güte der verwendeten Meßgeräte ein mittlerer quadratischer Fehler von $\pm$ 2 bis $\pm$ 3 % anzusetzen. Der Spannungsabfall in den Zuleitungen

von den Potentialmeßpunkten zur Heizwicklung innerhalb der Probe ist vernachlässigbar.

Wärmeverluste durch die thermische Isolation der Stirnflächen der Probe und entlang den Zuleitungsdrähten für die Meßfühler sind besonders bei hohen Kapitza-Widerständen gegeben. Die höchsten R_K-Werte wurden am System Al / ^{3}He bei der Temperatur T = 0,35 K gemessen. Aber auch hier ergibt sich für die Wärmestromdichte nur eine Korrektur von - 1,5 %

Insgesamt zeigen diese Abschätzungen, daß mit der konzentrischen Meßanordnung im betrachteten Temperaturbereich die tatsächlichen Kapitza-Widerstände zwischen Metall und HeII gemessen worden sind. Systematische Fehler übersteigen nicht den mittleren quadratischen Fehler des einzelnen R_K-Wertes, der je nach Größe des eingestellten Temperatursprunges einige Prozent (≤ 5 %) beträgt.

9 Diskussion der Ergebnisse

Der Vergleich der Meßergebnisse dieser Arbeit mit denen anderer Autoren macht einerseits deutlich, wie unterschiedlich der Kapitza-Widerstand für Proben aus gleichem Material sein kann, andererseits zeigt er, unter welchen Voraussetzungen die Werte reproduziert werden und im Falle verschiedener Materialien vergleichbar gemacht werden können. Die Abweichungen in den Ergebnissen werden dadurch hervorgerufen, daß die Proben in einem oder mehreren der folgenden Parameter differieren, die den Zustand der Probe bzw. der Oberfläche charakterisieren. Diese sind Reinheit und Struktur des Materials, Struktur der Oberfläche, Oxidschichten und andere adsorbierte Gasschichten. Gerade die zuletzt genannten Schichten lassen sich nicht vermeiden, weil die Proben während des Einbaus in die Meßzelle der Atmosphäre ausgesetzt sind. Ferner kommt bei der üblicherweise zur Bestimmung des Kapitza-Widerstandes benutzten linearen Meßanordnung hinzu, daß die Probe an die Meßkammer angelötet oder angeflanscht wird. Dadurch können in der Oberfläche Strukturstörungen hervorgerufen werden, die sich während des Experimentes nicht angeben lassen und die vor allem nicht reproduzierbar sind. Durch das Zusammenwirken dieser verschiedenen Größen auf den Kapitza-Widerstand tritt der Einfluß einzelner Parameter nicht deutlich genug hervor, was die zum Teil widersprüchlichen Aussagen erklärt. Selbst die Abhängigkeit des Kapitza-Widerstandes vom Probenmaterial oder vom Zustand des Heliums (Druck) kommt in den bisher vorliegenden Arbeiten nicht klar zum Ausdruck.

In Abb. 16 sind eine Reihe von Meßergebnissen für das System Kupfer / HeII zusammengestellt. Für Temperaturen $T < 1$ K wurden alle erhältlichen Daten verwendet. Aus der Vielzahl der experimentellen Ergebnisse bei höheren Temperaturen wurde eine Auswahl hinsichtlich einer vergleichbaren Probenbehandlung und Reinheit getroffen. Die Art der Darstellung

- $R_K T^3$ gegen T - verdeutlicht besonders die unterschiedlichen Temperaturabhängigkeiten, wobei die absoluten Größen der Kapitza-Widerstände durchaus miteinander vergleichbar sein können.

Wesentliche Einzelheiten wie Reinheit und Behandlung der zu den Kurven Nr. 1 bis 12 in Abb. 16 gehörenden Proben sind in Tabelle 5 angegeben.

Kurve 1 veranschaulicht die schon in Kapitel 7 angeführten Daten von ACW [26]. Wie schon erwähnt, weichen die eigenen Werte nur relativ wenig von diesen ab. Eine gleichartige Probenbehandlung wurde auch von Folinsbee und Anderson [43] angewendet, die die Kurve 2 gemessen haben. Ihre Meßanordnung ist dabei nicht konzentrisch wie die von ACW und die dieser Arbeit. Sie besteht im wesentlichen aus zwei Kupferscheiben, die durch eine dünne Heliumschicht voneinander getrennt sind. Beim Wärmetransport von einer Scheibe zur anderen wird hier der doppelte Kapitza-Widerstand wirksam. Die Ergebnisse stehen ebenfalls in Einklang mit den vorher genannten. Abweichend davon sind bei Temperaturen $T < 1$ K jedoch die anderen Kurven. Die Kurven 3 und 5 betreffen aber Proben geringerer Reinheit, die außerdem anders präpariert worden sind. Die altesten Daten für R_K von hochreinem Kupfer bei Temperaturen $T < 1$ K sind die von Fairbank und Wilks [46], die allerdings relativ ungenau sind (Kurve 4). Sie haben gleichzeitig mit R_K die Wärmeleitfähigkeit von superfluidem Helium an einem sich langsam aufwärmenden System zwischen 0,2 und 1 K gemessen. In ihrem Meßsystem ist die Bestimmung der Austauschoberfläche unsicher. Ebenso wie bei Wey-Yen [30] (Kurve 5) fehlt jeder Hinweis auf die Bearbeitung der Probenoberfläche.

Im Temperaturbereich $T > 1$ K sind die Kurven 8, 11 und 12 bezüglich der Temperaturabhängigkeit und der absoluten Größe von R_K eine Fortsetzung der Kurven 1, 2 und der eigenen Messungen. Probe Nr. 8 ist dabei von geringerer Reinheit

und wurde nicht getempert. Die hochreinen Proben Nr. 11 und 12 wurden ebenfalls nicht getempert, sonst jedoch ebenso behandelt wie die hier untersuchten Proben. Wie auch die Ergebnisse für die anderen Metalle zeigen, hat bei Temperaturen $T > 1$ K die Temperung keinen wesentlichen Einfluß mehr auf den Kapitza-Widerstand. Vielmehr wird R_K durch die Verunreinigung der Oberfläche bestimmt.

Hier sind die Experimente von Alnaimi und van der Sluijs [50] anzuführen, die die Reproduzierbarkeit des Kapitza-Widerstandes an einer Vielzahl von polykristallinen Cu-Scheiben untersuchten (s. Nr. 9 und 10). Die Meßzellen wurden dabei unterschiedlich lange bei 10^{-7} mbar evakuiert, wodurch die Belegung der Oberflächen mit Gasschichten variiert wurde. Die gewonnenen Werte für R_K lassen sich in zwei Gruppen einteilen. Ein bestimmter Oberflächenzustand liefert relativ kleine Wärmewiderstände (Kurve 9). Diese lassen sich für die gleiche Probe und relativ grob auch für verschiedene Proben reproduzieren. Fortgesetztes Evakuieren führt zu einem anderen Zustand, der einen höheren Wärmewiderstand zur Folge hat (Kurve 10). Die Reproduzierbarkeit für verschiedene Proben ist weitaus besser. Beide Zustände lassen sich ineinander überführen, indem man die Oberfläche der Luft aussetzt bzw. durch zusätzliches Evakuieren. Zwischenzustände, die der Kurve 11 entsprechen, sind ebenfalls einstellbar. Die Autoren geben an, daß das Verhalten der ersten Gruppe charakteristisch für eine schwach adsorbierte Oberflächenschicht ist, die sich durch Evakuieren verändern läßt.

Abb. 16 enthält schließlich noch die Kurven Nr. 6 und 7. Diese haben enbenso wie Kurve 3 eine Struktur mit relativen Minima und Maxima. Derartige Strukturen wurden auch von Jones und van der Sluijs [45] für den Kapitza-Widerstand von Kupfer / HeII gefunden. Die Kurve 6 gilt zwar für hochreines, elektropoliertes Kupfer, es fehlen aber Angaben über die Evakuierung der Meßzelle. Kurve 7 wurde an einer getemperten, ebenfalls hochreinen Probe gemessen, die aber nur mechanisch poliert worden ist.

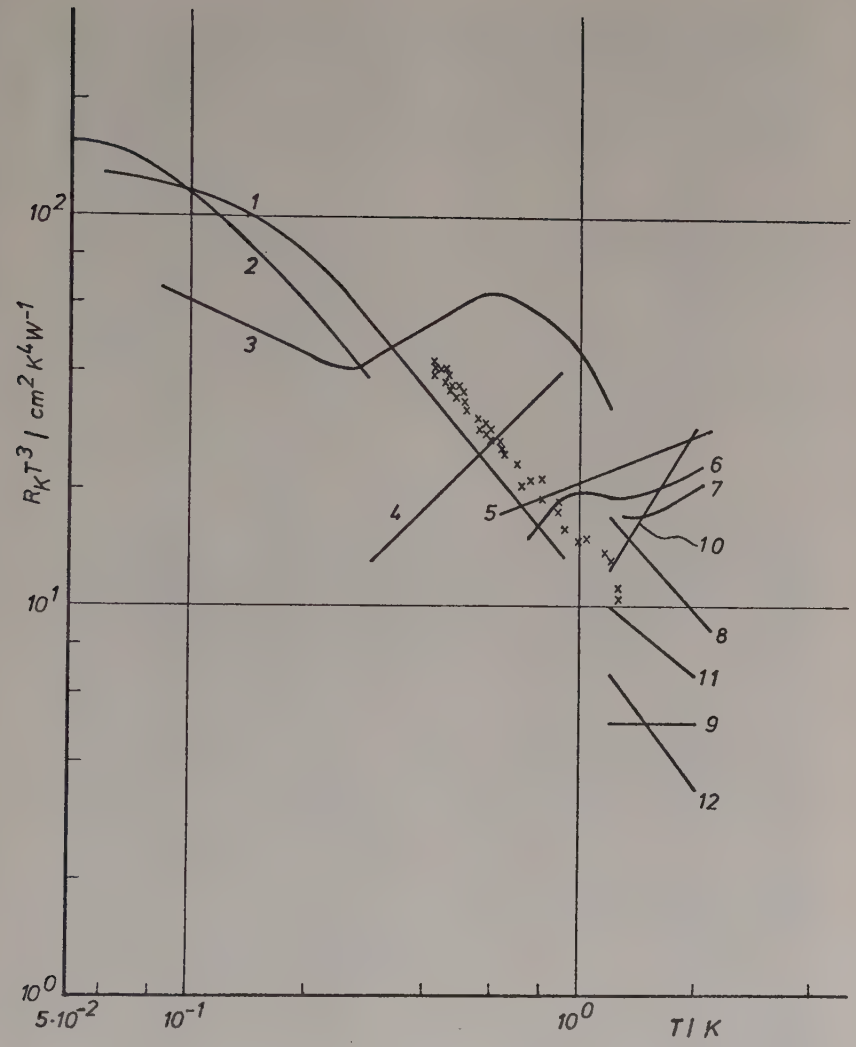


Abb.16 Kapitza-Widerstand zwischen Kupfer und HeII. (×)= diese Arbeit. Zu den Kurven Nr.1 bis 12 siehe Tabelle 5.

Tabelle 5

Kapitza-Widerstand zwischen Kupfer und He II.

In Abb. 16 Kurve Nr.	Ref.	Reinheit [%]	Präparierung	Kapitza-Widerstand $[cm^2\ K^4\ W^{-1}]$
1	26	99,999	getempert, elektropoliert	$R_K = 12\ T^{-4}$ ($T = 0{,}2 \ldots 0{,}9$ K)
2	43	99,999	getempert, elektropoliert	-
3	44	99,90	mechanisch poliert	ca. 50 T^{-3}, rel. Min. u. Max.
4	46	99,999	—	45 T^{-2}
5	30	99,90	—	20,8 $T^{-2,6}$
6	47	99,999	elektropoliert	rel. Min. und Max.
7	48	99,999	mechanisch poliert, 4 h im Vakuum bei 625 °C getempert	-
8	29	ofhc	elektropoliert	20,8 $T^{-4,1}$
9	50	99,999	8 h getempert bei 1000°C elektropoliert, mehrere Tage bei 10^{-7} mbar	$\sim T^{-2,9} \ldots T^{-3,4}$
10	50	99,999	wie 9, fortgesetztes Evakuieren	$\sim T^{-1,5} \ldots T^{-2,1}$
11, 12	45	99,999	elektropoliert	10,4 $T^{-3,2}$ und 7,1 $T^{-4,3}$

Für Kupfer erhält man also nur unter bestimmten Voraussetzungen relativ gut übereinstimmende Meßergebnisse. Dabei müssen offensichtlich die Oberflächen von getemperten, hochreinen Proben elektrolytisch gereinigt sein. Durch Evakuieren muß ein bestimmter Verunreinigungsgrad der Oberfläche eingestellt werden.

Die experimentellen Ergebnisse für die drei anderen Metalle sind in Abb. 17 zusammengefaßt. Zur Orientierung enthält diese Abbildung zusätzlich die Kurve 1 aus Abb. 16 und die eigenen Messungen für Kupfer (strichpunktiert). Die Kurven 1, 2 und 3 gelten für Blei im supraleitenden Zustand, die Kurven 4, 5, 6 und 7 für Nickel und Nr. 8 und 9 für Aluminium. In der nachfolgenden Tabelle 6 sind wiederum die wesentlichen Merkmale der verwendeten Proben aufgeführt.

Zur Diskussion des Einflusses von Oxidschichten und Deformationen seien zunächst die Untersuchungen von Wey-Yen [30] an Blei angeführt. Kurve 3 in Abb. 17 gilt für sehr reines Blei mit einer elektropolierten Oberfläche. Höhere Werte wurden beobachtet, nachdem die zunächst elektropolierte Oberfläche sich an Luft mit einer starken Oxidschicht belegt hatte. In anderen Versuchen hat Wey-Yen die Oberfläche von Pb direkt unter flüssigem Helium mit einem Stahlschneider präpariert. Oxid- oder Adsorptionsschichten waren daher ausgeschlossen. Die extrem starke Deformation der Oberfläche führte jedoch zu maximalen Kapitza-Widerständen ($R_K = 41{,}7\ T^{-3{,}2}$). Eine Ausheilung der Gitterfehler bei Raumtemperatur reduzierte R_K wieder, bis schließlich annähernd die Werte der Kurve 3 erreicht wurden. Diese Untersuchungen wurden nur an supraleitenden Proben vorgenommen.

Challis und Cheeke [51] haben die Methoden der Oberflächenreinigung durch eine Ionenbeschuß-Technik erweitert. Dabei erfolgte der Beschuß der Bleioberfläche direkt im fertig installierten Meßsystem mit Argon-Ionen. Dadurch werden

Oxidschichten und sonstige chemische Belegungen von der Oberfläche entfernt. Die Kurven 1 und 2 zeigen die Ergebnisse für zwei verschiedene Proben im supraleitenden Zustand. Wie aus Abb. 17 ersichtlich ist, schließen die eigenen Messungen an diese Kurven an. In weiteren Experimenten bestätigte Cheeke [52] die von Wey-Yen gefundene Empfindlichkeit des Kapitza-Widerstandes von supraleitendem Blei gegenüber der Versetzungsdichte. Man darf daher annehmen, daß die eigene Probe und die von Challis und Cheeke, die alle die gleiche Reinheit hatten, aufgrund der ähnlichen Temperungsbedingungen und der sonstigen Behandlung eine ähnliche Versetzungsdichte hatten, was wiederum zu relativ gut übereinstimmenden Kapitza-Widerständen führt.

Daten über den Kapitza-Widerstand zwischen Nickel und HeII liegen vor von Wey-Yen [30] und Cheeke, Hebral und Richard [31]. Wey-Yen beobachtete, daß R_K etwa um eine Größenordnung zunimmt, wenn die Oberfläche elektropoliert wird (vergl. Kurven 6 und 7 in Abb. 17). Er deutete dies als Folge einer großen Porosität der elektropolierten Nickeloberfläche. Es wird aber auch vermerkt, daß für Wärmestromdichten $\dot{q} <$ 0,6 mW cm^{-2} keine Linearität zwischen $\dot{q}$ und T mehr gegeben war.

Im Widerspruch dazu stehen die Ergebnisse von [31]. Diese Autoren untersuchten den Einfluß der Versetzungsdichte auf R_K bei Temperaturen zwischen 1 und 2 K. Sie erzeugten Ni-Proben mit möglichst großem unterschiedlichen Deformationsgrad. Es zeigte sich in R_K aber kein wesentlicher Unterschied (s. Kurve 4 und 5). Die eigenen Messungen für eine getemperte, elektropolierte und spannungsfrei montierte Probe schließen an die Ergebnisse von [31] gut an. Sie unterstützen daher die Folgerung von [31], daß bei Temperaturen T > 1 K der Einfluß von Deformationen vernachlässigbar ist.

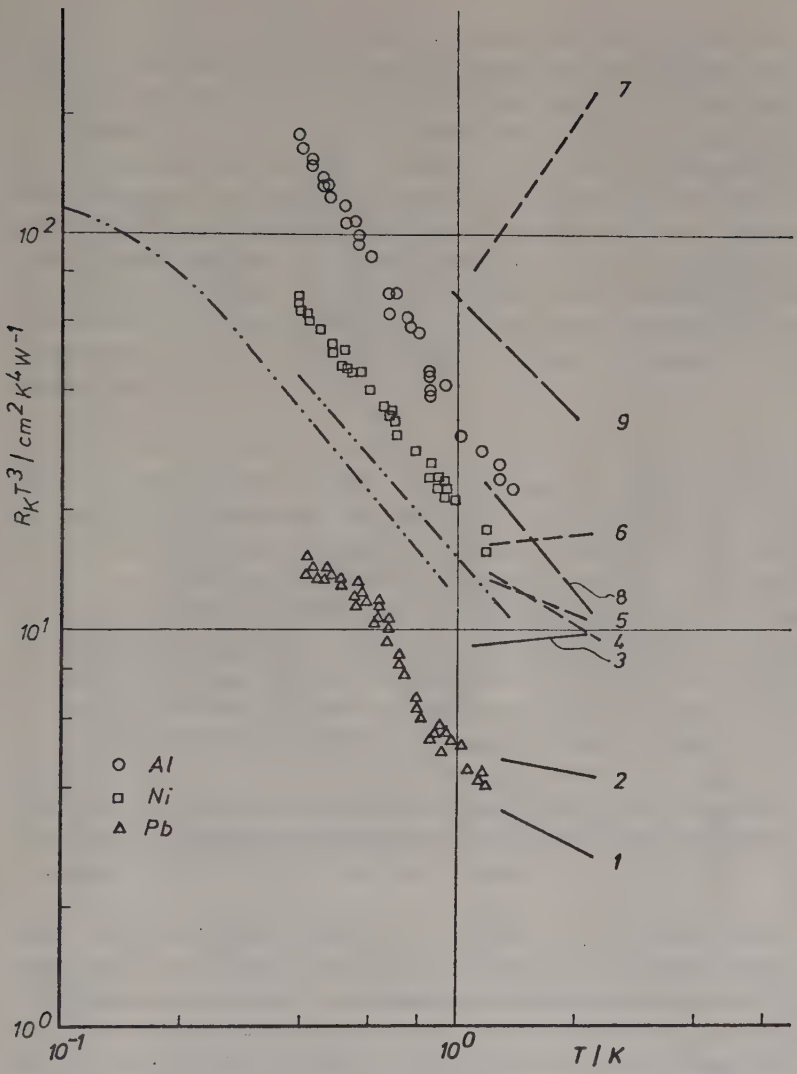


Abb.17 Kapitza-Widerstand zwischen Pb, Ni, und Al und HeII. Symbole = diese Arbeit. Pb = Kurve Nr. 1,2,3. Ni = Nr. 4.5.6.7. Al = Nr. 8,9. Cu = (—··—), diese Arbeit und [26]. Zu Nr.1 bis 9 siehe Tabelle 6.

Tabelle 6

Kapitza-Widerstand zwischen Pb, Ni und Al und He II.

In Abb. 17 Kurve Nr.	Ref.	Metall Reinheit [%]	Präparierung	Kapitza-Widerstand $[cm^2\ K^4\ W^{-1}]$
1, 2	51	Pb (S) 99,999	15 h im Vakuum getempert, elektropoliert, Ionenbeschuß	$R_K = 4\ T^{-3,5}$ bzw. $5\ T^{-3,2}$
3	30	Pb (S) 99,997	elektropoliert	$9,1\ T^{-2,9}$
4	31	Ni 99,995	7 h im Vakuum bei 1000 °C getempert	$15,6\ T^{-3,6}$
5	31	Ni 99,995	elektropoliert	$14,5\ T^{-3,4}$
6	30	Ni 99,99	—	$16,1\ T^{-2,9}$
7	30	Ni 99,99	elektropoliert	$70,4\ T^{-1,5}$
8	29	Al 99,999	1 h in Luft bei 450 °C getempert, chemisch poliert	$28,6\ T^{-4,2}$
9	53	Al	—	$69,0\ T^{-4,0}$

In diesen Zusammenhang gehören auch die Beobachtungen von Challis und Cheeke [51], die bei normalleitendem Blei nur einen geringen Einfluß des Ausheilstadiums auf R_K im Temperaturbereich T = 1 ... 2 K feststellten. Bei Temperaturen um 0,1 K dagegen hat der metallurgische Zustand des Metalls eine dominierende Wirkung auf den Kapitza-Widerstand. So erhielten Johnson und Anderson [49] die höchsten R_K-Werte für elektropolierte Proben, die im Hochvakuum getempert worden sind. Eine gezielte Erhöhung der Versetzungsdichte führte zu einer beachtlichen Reduktion von R_K. Mit zunehmender Temperatur verliert sich dieser Einfluß, andere Parameter gewinnen dann an Bedeutung.

Der Kapitza-Widerstand zwischen Aluminium und HeII wurde bisher nur von Challis und Sherlock [53] und von Mittag [29] experimentell untersucht. Mit Hilfe des zweiten Schalls im Helium haben Challis und Sherlock an Aluminiumfolien, die für diese Messungen nicht besonders behandelt worden sind, wesentlich höhere Wärmewiderstände (Kurve 9) erhalten als die von Mittag und die hier vorgestellten. Da von diesen Autoren keine Spezifikationen angegeben worden sind, werden diese Ergebnisse für die weitere Diskussion nicht herangezogen. Die Ergebnisse von Mittag (Kurve 8) dagegen wurden an einer Probe erzielt, die ähnlich wie die eigene präpariert worden ist. Die eigenen Messungen haben zwar eine etwas größere Temperaturabhängigkeit, absolut gesehen bilden sie eine gute Fortsetzung der Kurve 8 zu tieferen Temperaturen hin.

Für die Vergleichbarkeit der in dieser Arbeit beschriebenen Messungen ist noch ein weiterer Parameter von Wichtigkeit, nämlich die Rauhigkeit der Oberfläche. Wie schon in Abschnitt 7.1.1 hervorgehoben, stimmen die Ergebnisse für Kupfer von ACW und dieser Arbeit gut überein, obwohl sich die Rauhigkeiten etwa um den Faktor 50 unterscheiden. Ähnliches berichtet Zinov'eva [44], die durch Aufsinterung von Metallpulver eine Vergrößerung der effektiven Oberfläche um das

Achtfache erreichte, wodurch sich R_K aber nur geringfügig um + 20 % änderte.

In all diesen Fällen ist die Wellenlänge der im untersuchten Temperaturbereich hauptsächlich angeregten Phononen im Helium ($\lambda \approx 40\ T^{-1}$ Å K) immer noch kleiner als die Größe der Rauhigkeiten. Die effektive Oberfläche für die Wärmeübertragung sollte demnach größer sein als die gemessene. Der Vergrößerungsfaktor ist nun von der absoluten Höhe der Unebenheiten unabhängig; er wird bestimmt durch das Verhältnis aus Höhe und Breite der einzelnen Rauhigkeiten. Aufgrund der elektrolytischen Bearbeitung von den Metalloberflächen ist für dieses Verhältnis ein Wert um $\leq 0{,}5$ anzunehmen. Unabhängig davon, welches geometrische Modell für die Abschätzung der wahren Oberfläche zugrundegelegt wird, ergibt sich im Mittel eine Verdoppelung der effektiven Oberfläche gegenüber der gemessenen. Dementsprechend verdoppelt sich auch der Kapitza-Widerstand.

Sind die charakteristischen Dimensionen der Rauhigkeiten dagegen vergleichbar mit der Wellenlänge der Heliumphononen, so sollte nach Berechnungen von Adamenko und Fuchs [54] aufgrund von Resonanzeffekten der Kapitza-Widerstand verringert werden. Ist schließlich die Wellenlänge größer als die Rauhigkeiten, sind diese vernachlässigbar und es sollte die Khalatnikov'sche Theorie gültig sein. Dagegen sprechen aber Experimente von Wagner und Yaqub [58] an Spaltflächen von Glimmer im Temperaturbereich T = 1 ... 2 K. Die selbst in atomaren Dimensionen glatten Flächen zeigen einen Kapitza-Widerstand, der ebenso vom AM-Modell abweicht wie derjenige von rauhen Flächen. Da auch die Ergebnisse der vorliegenden Arbeit keine Abhängigkeit des Kapitza-Widerstandes von den Rauhigkeiten der verschiedenen Metalloberflächen (s. Tabelle 2) ergeben, unterstreichen sie die Folgerung, daß beim Wärmeübergang im Temperaturbereich T > 1 K der Phononenmechanismus von anderen Transportprozessen überdeckt wird.

Zusammenfassend ergibt sich aus der Diskussion der Ergebnisse, daß - hochreine und elektropolierte Metalle vorausgesetzt - die Reproduzierbarkeit und Vergleichbarkeit des Kapitza-Widerstandes im wesentlichen durch die Versetzungsdichte und durch die Verunreinigung der Oberfläche bestimmt werden. Die sorgfältige Temperung und die spannungsfreie Halterung der hier untersuchten Proben führten bei diesen zu minimalen Versetzungsdichten. Dies wird insbesondere durch die Ergebnisse an Blei und Kupfer unterstrichen. Zur Charakterisierung des Verunreinigungsgrades der Oberfläche lassen sich die drei Arten von Oberflächenzuständen angeben, jenachdem ob die Temperaturabhängigkeit des Kapitza-Widerstandes größer, gleich oder kleiner T^{-3} ist. Da hier in allen Fällen eine Temperaturabhängigkeit größer T^{-3} gefunden wurde, ist für die verschiedenen Oberflächen zumindest ein ähnlicher Zustand anzunehmen. Die gute Übereinstimmung der R_K-Werte für das leicht oxidierbare Blei mit den Ergebnissen von Challis und Cheeke [51] zeigt außerdem, daß der Verunreinigungsgrad gering ist. Die Vergleichbarkeit der Meßergebnisse an den verschiedenen Metallen wird nicht zuletzt daraus ersichtlich, daß der Kapitza-Widerstand eine systematische Abhängigkeit von den Stoffwerten der Metalle zeigt. Die Auswirkung des verwendeten Heliumisotops auf die Wärmeübertragung ist in Abb. 18 dargestellt. Dort werden die Kapitza-Widerstände zwischen Metallen und flüssigem ^{3}He verglichen mit den Werten für HeII, die jeweils an den gleichen Oberflächen ermittelt worden sind. Die Symbole kennzeichnen die eigenen korrigierten ^{3}He-Werte. Die durchgehenden Linien sind die zugehörigen Ergebnisse für HeII. Die unterbrochenen Kurven gelten für getempertes und elektropoliertes Kupfer. Der Arbeit von Folinsbee und Anderson [43] sind die Kurven 1 (HeII) und 2 (^{3}He) entnommen. Kurve 3 ist das schon bekannte Ergebnis für HeII von ACW [34]. Die dazugehörenden ^{3}He-Werte bezeichnet Kurve 4. Weitere derartige Vergleichsmessungen existieren nur noch für Magnesium und Wolfram zwischen 0,03 und 0,3 K, die ebenfalls von [43] erzielt worden sind.

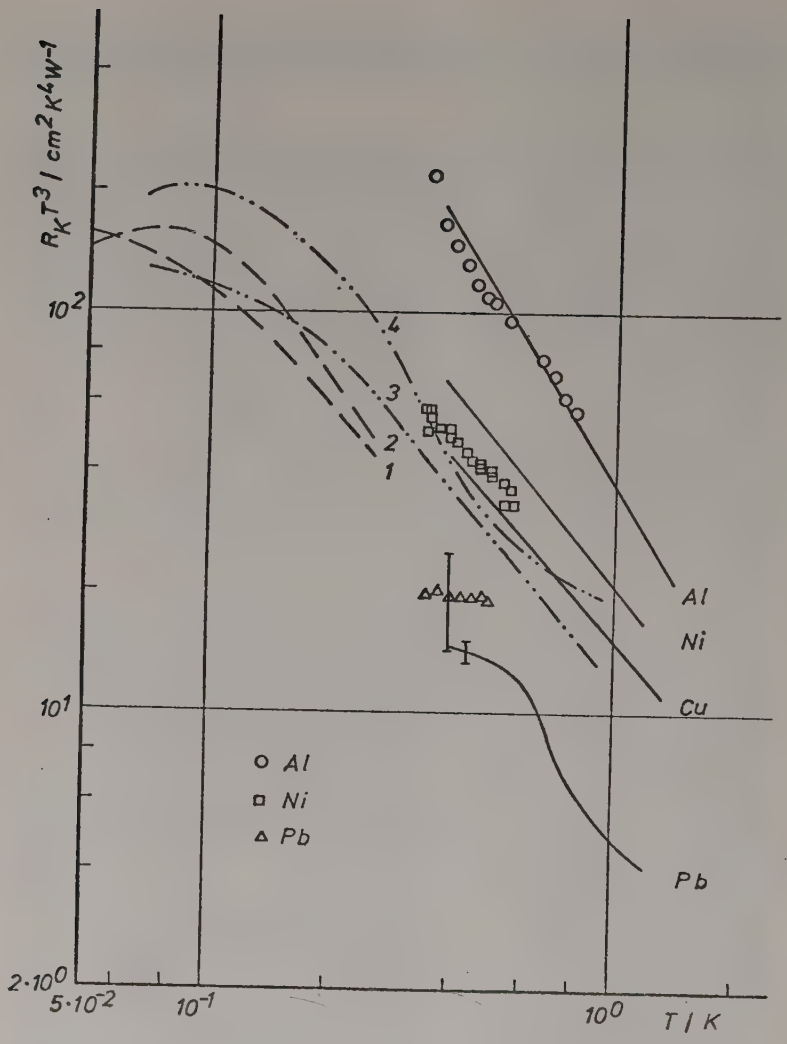


Abb.18 Kapitza-Widerstand an ^{3}He und HeII für jeweils identische Oberflächen. Diese Arbeit: ^{3}He = Symbole, HeII = (———). [43]: Cu (— —), HeII = Nr.1, ^{3}He = 2. [26] : Cu (— ·· —), HeII = 3, ^{3}He = 4.

In keinem Fall entsprechen die Unterschiede den theoretischen Erwartungen. Vielmehr muß festgestellt werden, daß der Kapitza-Widerstand unabhängig von der Statistik des Heliums ist. Spezifische Anregungen der Flüssigkeiten tragen also zum Wärmetransport nicht bei. Erst bei Temperaturen unterhalb 0,1 K beobachtet man beim ^{3}He einen additiven Mechanismus. Metalle mit magnetischen Verunreinigungen und paramagnetische Salze zeigen magnetische Wechselwirkungen mit den ^{3}He-Kernspins, wodurch die Wärmeübertragung verbessert wird [17, 18]. Die eigenen Messungen an dem ferromagnetischen Metall Nickel lieferten für ^{3}He geringere Wärmewiderstände als für HeII. Die theoretische Behandlung des Beitrages der Spin-Spin-Wechselwirkung zum Kapitza-Widerstand [19] läßt es aber unwahrscheinlich erscheinen, daß bei den hier angewendeten Temperaturen T > 0,34 K dieser Mechanismus schon wirksam wird.

10 Vergleich mit der Theorie

Das Acoustic-Mismatch-Modell ergibt einen oberen Grenzwert des Kapitza-Widerstandes, während das Phonen-Radiation-Limit eine untere Grenze liefert. Tatsächlich lassen sich alle experimentellen Ergebnisse zwischen diesen Grenzen einordnen. Im Folgenden werden die beiden Grenzwerte für die hier untersuchten Metalle berechnet.

Setzt man für die Dichte des superfluiden Heliums ρ_L = 0,145 g cm^{-3} und für die Schallgeschwindigkeit c_L = 0,238 10^5 cm s^{-1} ein, so ist nach Gleichung (5)

$$R_K^{AM} T^3 = 0{,}709 \cdot 10^{-14}\ \rho\ c_t^{\,3}\ F_K^{-1}\ (cm^2\ K^4\ W^{-1})$$

und nach Gleichung (4)

$$R_K^{PR} T^3 = 0{,}982 \cdot 10^{-10}\ c_t^{\,2} \left[2 + \left(\frac{c_t}{c_l}\right)^2 \right]^{-1} (cm^2\ K^4\ W^{-1}),$$

wobei ρ, c_t und c_l die Dichte, die transversale und die longitudinale Schallgeschwindigkeit des Festkörpers sind.

Die Funktion $F_K\ (c_l/c_t) = F_1 + F_2$ berücksichtigt durch den ersten Summanden die Phononentransmission innerhalb der kritischen Winkel und durch F_2 die Absorption von Oberflächenwellenenergie. In normalleitenden Metallen ist letztere möglich durch Wechselwirkung mit Leitungselektronen, während bei Dielektrika Verunreinigungen in der Oberfläche zu den notwendigen Streuprozessen führen können. Für sehr reine Supraleiter entfällt daher der Term F_2 bei Temperaturen weit unterhalb der Übergangstemperatur T_c.

Challis und Cheeke [14] haben F_1 und F_2 in Abhängigkeit von c_l/c_t berechnet und tabelliert. Eine gewisse Unsicherheit besteht jedoch bezüglich der Größe von F_2. Beim Übergang vom supraleitenden in den normalleitenden Zustand müßten sich die

Kapitza-Widerstände nämlich verhalten wie $(F_1 + F_2) / F_1 > 1$. Beobachtet wird aber ein Verhältnis ≈ 1. Trotzdem wird hier der Theorie folgend für die normalleitenden Metalle $F = F_1 + F_2$ gesetzt und für die supraleitenden $F = F_1$. In Tabelle 7 sind die notwendigen Stoffwerte für die verschiedenen Proben aufgeführt sowie die berechneten Werte R_K^{AM} und R_K^{PR}.

Die transversalen Phononen liefern aufgrund ihrer höheren Energiedichte den Hauptbeitrag zum Wärmetransport. Nickel und Aluminium haben ungefähr die gleiche transversale Schallgeschwindigkeit und damit auch fast gleiche Werte für die untere Grenze. Im AM-Modell werden bei diesen beiden Metallen die unterschiedlichen Dichten gerade durch die jeweiligen Faktoren F kompensiert, so daß auch hier die Werte für Ni und supraleitendes Aluminium etwa zusammenfallen.

Die Relationen der verschiedenen R_K-Werte zueinander zeigt in anschaulicher Weise die graphische Darstellung Abb. 19. Einige Verhältnisse sind zusätzlich in der Tabelle 8 in Zahlen ausgedrückt. Es ist offensichtlich, daß bei hohen Temperaturen das Phonon-Radiation-Limit die experimentellen Ergebnisse besser beschreibt als das Acoustic-Mismatch-Modell. Mit abnehmender Temperatur ändert sich dies zugunsten der AM-Theorie. Ein Zusammenhang zwischen Festkörpereigenschaften und den Diskrepanzen zwischen experimentellen und theoretischen R_K-Werten, wie es z. B. in [31, 58] postuliert wird, läßt sich nicht erkennen. Dort wird herausgestellt, daß zum einen eine Temperaturabhängigkeit größer T^{-3} charakteristisch für Materialien mit relativ hoher Debye-Temperatur ist, und daß zum anderen die Abweichungen vom AM-Modell mit der Debye-Temperatur zunehmen.

Wie aus Abb. 18 ersichtlich, zeigen die Kapitza-Widerstände von Blei und Kupfer einen ähnlichen Verlauf in der Temperaturabhängigkeit. Bei $T \leq 0{,}5$ K ändert sich $R_K T^3$ kaum noch im Falle des Bleis. Dieser Bereich wird beim Kupfer zwischen 0,05 und 0,1 K erreicht. Messungen von Folinsbee und Anderson

[43] an anderen normalleitenden Metallen ergeben ebenfalls relativ konstante Werte für $R_K T^3$ bei Temperaturen um 0,1 K. Die nach dem AM-Modell theoretisch erwartete Temperaturabhängigkeit wird demnach bei genügend tiefen Temperaturen gefunden. Auch hinsichtlich der absoluten Größe des Kapitza-Widerstandes lassen sich die experimentellen Ergebnisse mit einer modifizierten AM-Theorie erklären.

In Abschnitt 2 (Seite 11) wurde bereits dargelegt, daß der überwiegende Anteil der Phononen des Heliums an der Grenzfläche zum Festkörper totalreflektiert wird. Dabei haben die angeregten Rayleigh-Wellen eine Eindringtiefe in den Festkörper von der Größenordnung der transversalen Wellenlänge. Diese beträgt bei 0,1 K etwa 10^3 bis 10^4 Å. Streuprozesse in dieser Oberflächenregion sind daher für den Kapitza-Widerstand von Wichtigkeit. Peterson und Anderson [7] führten in ihre Theorie einen Dämpfungsparameter λ/l ein, wobei λ die Wellenlänge der Phononen und l ihre mittlere freie Weglänge bedeuten. Durch Variationen des Dämpfungsparameters kann dann der Beitrag der Rayleigh-Wellen zur Wärmeübertragung verändert werden. Bei verschwindender Dämpfung ergibt sich als Ergebnis wieder Gleichung (5) mit $F_K = F_1$. Wird eine sehr starke Dämpfung angenommen, sind nur die Rayleigh-Wellen im Bereich des Resonanzmaximums der Amplitude wirksam, und es ist $F_K = F_1 + F_2$. Im Zwischenbereich durchläuft der Beitrag der Rayleigh-Wellen ein Maximum bzw. der resultierende Kapitza-Widerstand ein Minimum. Übereinstimmung mit den experimentellen Werten ergibt sich bei $\lambda/l \approx 1$ [7, 43]. Dieser Wert ist um einen Faktor 10 größer als er sich aus der bei normalleitenden Metallen vorhandenen Elektron-Phonon-Wechselwirkung ergibt [14]. Aufgrund der experimentellen Ergebnisse sind als zusätzliche Prozesse, die zu der notwendigen Dämpfung führen, die Streuungen an Versetzungsfehlern anzunehmen. Diese Wechselwirkung allein haben Haug und Weiss [15] in ihre theoretischen Betrachtungen einbezogen und qualitativ die gleichen Ergebnisse wie [7] erhalten.

Tabelle 7

Stoffwerte der untersuchten Metalle und berechnete Kapitza-Widerstände für He II.

	Blei	Kupfer	Nickel	Aluminium
Dichte [55], g cm^{-3}	11,6	9,02	8,97	2,73
Debye-Temp. [55], K	105	345	476	431
transversale Schallgeschw. c_t, 10^5 cm s^{-1}	0,96 [b]	2,39 [a]	3,22 [a]	3,24 [a]
longitudinale Schallgeschw. c_l, 10^5 cm s^{-1}	2,33 [b]	4,83 [a]	5,89 [a]	6,79 [a]
c_l/c_t	2,42	2,02	1,83	2,1
$F = F_1 + F_2$	1,49	1,63	1,76	1,59
$F = F_1$	0,58	--	--	0,59
$\rho\, c_t^3\, F^{-1}$, 10^{15} g s^{-3}	(N) 6,9	75,6	170,2	(N) 157,4
	(S) 17,6	--	--	(S) 58,4
$R_K^{AM}\, T^3$, cm^2 K^4 W^{-1}	(N) 48,8	536	1206	(N) 414
	(S) 125	--	--	(S) 1116
$R_K^{PR}\, T^3$, cm^2 K^4 W^{-1}	0,42	2,5	4,43	4,63

a = [56], b = berechnet aus elastischen Konstanten nach [55]

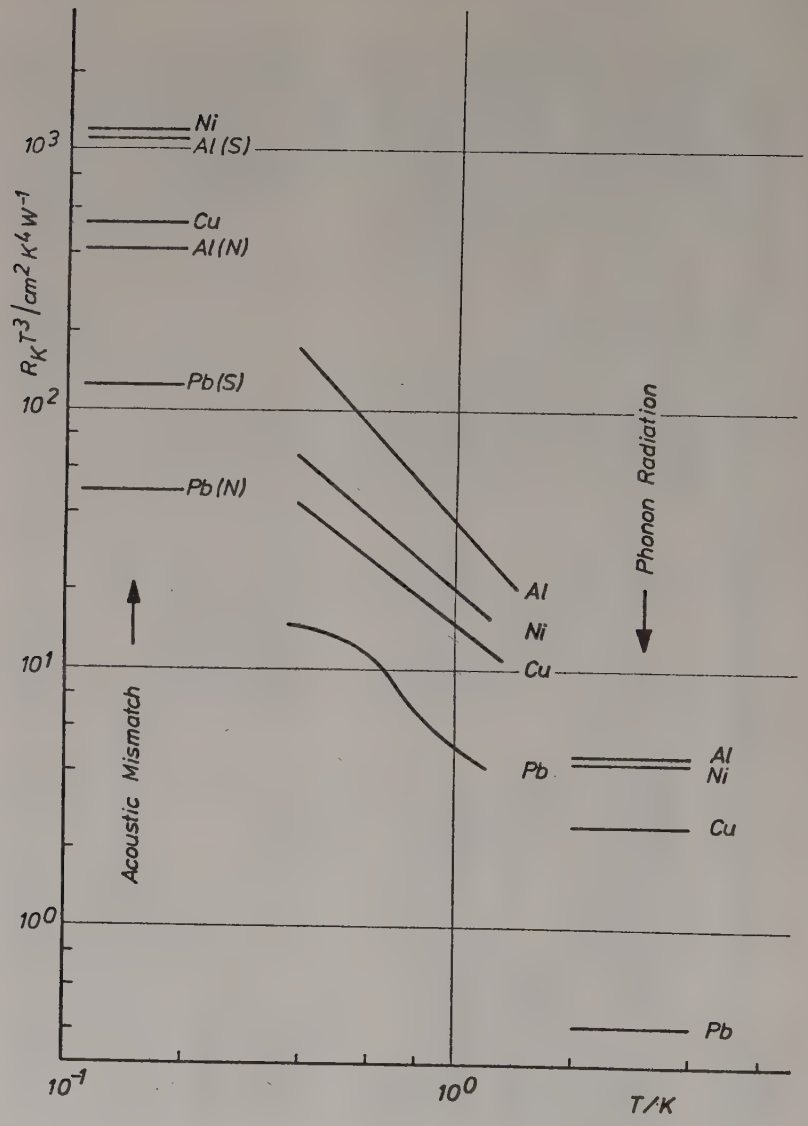


Abb.19 Kapitza-Widerstand zwischen Metall und HeII.
Vergleich der Meßergebnisse mit theoretischen Werten.

Tabelle 8

Vergleich der gemessenen und berechneten Kapitza-Widerstände.

		Blei	Kupfer	Nickel	Aluminium
R_K^{AM} / R_K^{EX} bei	0,4 K	(S) 8,6	12,5	18,6	(S) 6,8
	1,2	(S) 30,1	44	73,1	(S) 39,9 (N) 14,8
R_K^{EX} / R_K^{PR} bei	0,4	34,8	17,2	14,7	35,7
	1,2	9,9	4,8	3,7	6,1
R_K^{AM} / R_K^{PR}		(S) 298			(S) 241
		(N) 116	214	272	(N) 89,4

Bei Temperaturen um 1 K ist die Eindringtiefe der Phononen wesentlich geringer als bei 0,1 K. Man müßte daher unrealistisch kleine mittlere freie Weglängen annehmen, wollte man die derart modifizierte AM-Theorie den experimentellen Ergebnissen anpassen. Es müssen also andere Mechanismen zur Erklärung des Kapitza-Widerstandes herangezogen werden.

Challis, Dransfeld und Wilks [59] haben deshalb die größere Dichte der adsorbierten He-Schicht an der Grenzfläche berücksichtigt. Diese Schicht mit einer Dicke von etwa 15 Å bzw. drei Atomlagen stellt besonders für die kurzwelligen Phononen, d. h. für Helium bei höherer Temperatur, hinsichtlich der akustischen Impedanzen eine Zwischenschicht dar. Dadurch wird die Energieübertragung verbessert, was eine Verringerung des Kapitza-Widerstandes bedeutet. Ihre Berechnungen ergeben auch eine höhere Temperaturabhängigkeit $R_K \approx T^{-4,2}$. Die absolute Übereinstimmung mit den Meßwerten bleibt aber weiterhin unbefriedigend.

Das Vorhandensein einer adsorbierten, festeren Heliumschicht eröffnet aber eine andere Möglichkeit der Wärmeübertragung, nämlich durch die direkte Desorption einzelner Heliumatome dieser Schicht durch oszillierende Festkörperatome an der Oberfläche [8, 60]. Im hier interessierenden Temperaturbereich reicht die Energie der Festkörperphononen zwar nicht aus, um Heliumatome aus der ersten, relativ stark gebundenen Atomlage (Bindungsenergie ≈ 100 K) zu desorbieren, aber die schwächer gebundenen Atome der zweiten oder dritten Lage können aktiviert werden. Diese Atome geben ihre Energie dann an die Flüssigkeit ab, die ihrerseits durch das ^{3}He-Bad des Kryostaten gekühlt wird. Im Mittel haben dann die rückadsorbierten Atome eine niedrigere Temperatur als die desorbierten, d. h. es fließt Wärme vom Festkörper in das Helium.

Diese Vorstellung wird auch durch neuere Experimente erhärtet, in denen der Reflexionskoeffizient hochfrequenter Phononen (10^2 - 10^3 G Hz) an Spaltflächen von Einkristallen in Abhän-

gigkeit von der Dicke der adsorbierten Heliumschicht untersucht wurde [9, 27, 28]. Mit dem Aufbau der ersten Atomlage ändert sich der Reflexionskoeffizient zunächst nicht. Erst wenn die nächsten beiden Lagen aufgefüllt werden, nimmt die Reflexion zunehmend ab und erreicht dann einen konstanten Wert, der sich auch nicht mehr ändert, wenn Flüssigkeit vorhanden ist. Der Energieverlust durch die Oberfläche ist also eng an die zweite und dritte Heliumlage gekoppelt. Eine weitere Folgerung ist, daß die Bindungsverhältnisse in der dichteren Heliumschicht durch die Flüssigkeit nicht wesentlich beeinflußt werden.

Das van der Waals-Potential U (d) für ein Partikel in der Nähe einer Wand nimmt mit dem Abstand d ab, und zwar gemäß $U(d) = \alpha\, d^{-3}$ [62]. Die Dicke d_o einer Heliumatomlage sei $d_o = 3{,}6$ Å und die van der Waals-Konstante $\alpha = 100$ K (mittlerer Wert bei Metallen). Dann ergeben sich für die Atome in der zweiten und dritten Lage Bindungsenergien von 12,5 bzw. 3,7 K/Atom. Derartige Energien stehen im Phononenspektrum der Festkörper bei Temperaturen 1 K bereits zur Verfügung, so daß Desorptionen möglich sind. Mit zunehmender Temperatur vergrößert sich die Effektivität des damit gekoppelten Transportmechanismus.

Die Bindung eines Atoms wird durch die thermische Bewegung der Oberfläche in Richtung der Flächennormalen beeinflußt. Derartige Oszillationen werden hauptsächlich durch longitudinale Phononen sowie durch Rayleigh-Wellen und streifend einfallende transversale Phononen erzeugt. Im Folgenden wird daher nur der longitudinale Anteil der Phononen im Festkörper betrachtet.

Es sei die Bindungsenergie für ein Heliumatom in einer bestimmten Lage gleich E_o. Dann können nur diejenigen Phononen mit einer Energie $\varepsilon > E_o$ das Atom aus dieser Schicht herauslösen. Da die Anzahl der Atome innerhalb der Korrelationslänge eines Phonons groß ist, kann die Wahrscheinlichkeit für einen der-

artigen Prozess gleich Eins gesetzt werden. Die Energiedichte der Phononen mit $\varepsilon > E_o = \hbar\omega_o$ ist

$$E = \frac{\hbar}{2\pi c c_1^3} \int_{\omega_o}^{\infty} d\omega\, \omega^3 \left[e^{\hbar\omega/kT} - 1 \right]^{-1} .$$

Der dargelegte Mechanismus führt dann zu einem Wärmestrom $\dot{Q}$ durch die Grenzfläche A:

$$\dot{Q} = \frac{1}{4} A\, c_1 \frac{dE}{dT} \Delta T .$$

Für den Wärmeübergangskoeffizienten (Leitfähigkeit) h_P erhält man

$$h_P = \frac{k^4 T^3}{8\pi^2 \hbar^3 c_1^2} \int_{x_o}^{\infty} dx\, x^4 e^x (e^x - 1)^{-2}$$

bzw.

$$h_P = \frac{k^4 T^3}{2\pi^2 \hbar^3 c_1^2} \left[\int_{x_o}^{\infty} \frac{x^3 dx}{e^x - 1} + \frac{x_o^4}{4(e^{x_o} - 1)} \right]$$

mit $x = \hbar\omega/kT$ und $x_o = E_o/kT$.

Die Kombination des Phononenmechanismus nach dem AM-Modell und des Desorptionsmechanismus durch Anregung einzelner Teilchen liefert eine Gesamtleitfähigkeit bzw. einen Gesamtwiderstand für die Energieübertragung

$$h_G = R_G^{-1} = h_{AM} + h_P = R_{AM}^{-1} + R_P^{-1} .$$

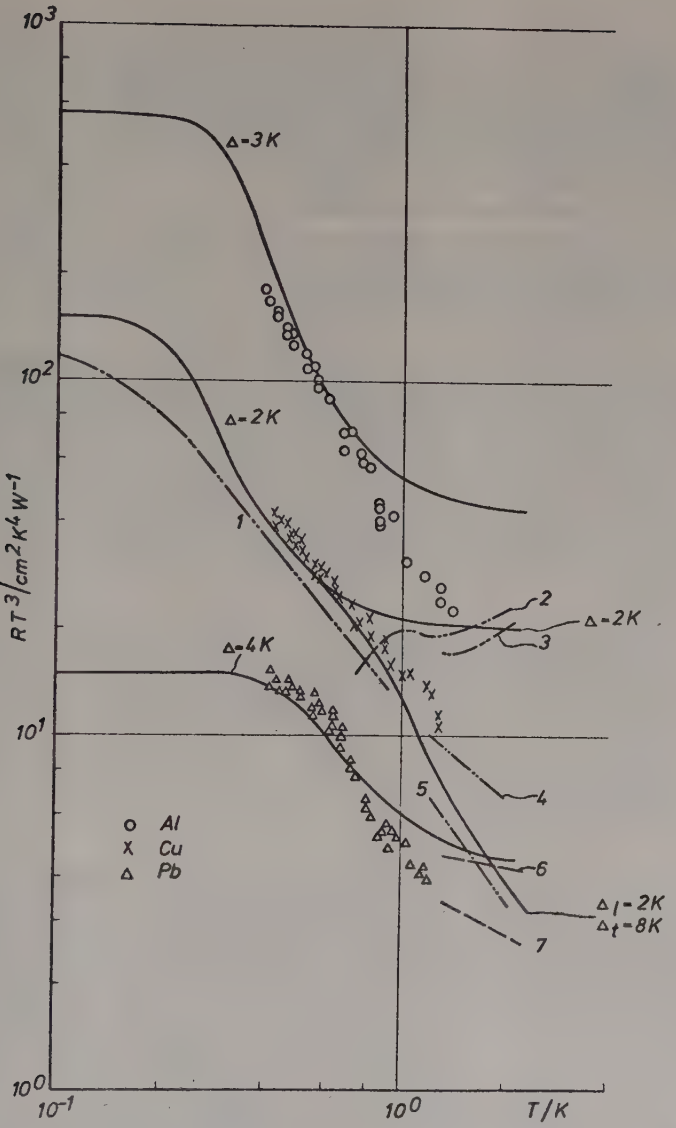


Abb.20 Gemessener und berechneter Kapitza-Widerstand zwischen Pb,Cu und Al und HeII. Symbole = diese Arbeit. (—··—·) = Cu, Nr.1 [26], Nr.2 [47], Nr. 3 [48], Nr.4,5 [45], (— — —) = Pb, Nr6,7 [51]. (———) = Theoretische Ergebnisse, siehe Text.

Verwendet man das o. a. modifizierte AM-Modell bei der Berechnung von R_{AM}, so stehen zwei Parameter, nämlich der Dämpfungsparameter λ/l und die Anregungsenergie E_o, zur Anpassung des theoretischen Wärmewiderstandes an die experimentellen Ergebnisse zur Verfügung. Dies wurde für Blei, Kupfer und Aluminium durchgeführt und ist in Abb. 20 dargestellt. Experimentelle Werte sind durch Symbole und unterbrochene Linien gekennzeichnet. Die ausgezogenen Linien sind die berechneten Widerstände $R_G T^3$.

Für Bindungsenergien $E_{o/k} > 1$ K ist der Summand R_P bei Temperaturen $T < 0{,}1$ K vernachlässigbar. In diesem Temperaturbereich ist dann durch Variation von λ/l die Übereinstimmung zwischen R_{AM} und den experimentellen Werten R_{EX} herzustellen: $R_{AM}(\lambda/l) = R_{EX}$. Im Falle des Aluminiums wurde willkürlich $R_{EX}(T \leq 0{,}1\ K) = \frac{1}{2} R_K^{AM}$ gesetzt. R_K^{AM} ist der nach dem unmodifizierten AM-Modell berechnete Kapitza-Widerstand (siehe Tabelle 7).

Die Übereinstimmung der berechneten Widerstände mit den experimentellen Werten ist trotz der vereinfachenden Annahmen über den Desorptionsmechanismus relativ gut. Die Größe des in Abb. 20 angegebenen Parameters $\Delta = E_{o/k}$ von einigen Kelvin steht in Einklang mit den Bindungskräften in der zweiten oder dritten Heliumlage [62].

Bei einer Temperatur von 2 K nimmt $R_G T^3$ einen unteren Grenzwert an, der gerade dem Phonon-Radiation Limit für longitudinale Phononen entspricht. Unter Berücksichtigung der anderen Polarisationsrichtungen lassen sich niedrigere Grenzwerte bei Temperaturen $T > 2$ K herbeiführen. Die für eine bessere Anpassung notwendige Verbreiterung des Übergangsbereiches wird dadurch aber nicht erreicht. Dies ist jedoch möglich, wenn für diese Phononen höhere Δ-Werte angenommen werden, so daß sie erst bei höheren Temperaturen einen wirksamen Beitrag zum Wärmetransport leisten. Im Falle transversaler Phononen ist diese Forderung vorstellbar, da nur die Impulskomponente

senkrecht zur Oberfläche für den Desorptionsmechanismus wirksam ist. Abb. 20 zeigt für Kupfer eine derart berechnete Kurve, wobei die longitudinalen Phononen den Parameter Δ_l = 2 K und die transversalen Phononen den Parameter Δ_t = 8 K haben.

Die Beschränkung auf einzelne Δ-Werte stellt natürlich eine grobe Vereinfachung dar. Tatsächlich sind aufgrund der unterschiedlichen Adsorptionslagen und Konfigurationen auch unterschiedliche Bindungskräfte wirksam. Ferner müßten die verschiedenen Adsorptionszustände mit bestimmten Anregungswahrscheinlichkeiten gewichtet werden. Es ist aber offensichtlich, daß die Einbeziehung direkter Anregungsprozesse einzelner Heliumatome prinzipiell geeignet ist, die experimentell gefundenen Kapitza-Widerstände zu deuten. Dies gilt auch für den Effekt, daß der Kapitza-Widerstand unabhängig davon ist, ob der Wärmetransport an ^{4}He oder ^{3}He stattfindet. Messungen des van der Waals-Potentials an bestimmten Kristallflächen ergeben für beide Isotope übereinstimmende Werte [62], d. h. Anregungsprozesse können bei beiden Medien den gleichen Beitrag zum Energietransport liefern.

Der Einfluß des Festkörpers auf den Kapitza-Widerstand bzw. die Leitfähigkeit im hier untersuchten Temperaturbereich ist durch die Schallgeschwindigkeit und durch das van der Waals-Potential gegeben. Wird die experimentell gefundene Leitfähigkeit h^{Ex} auf die maximal mögliche Leitfähigkeit h^{PR} normiert, erhält man einen mittleren akustischen Transmissionskoeffizienten $\bar{\alpha} = h^{Ex}/h^{PR}$, der nur noch eine Funktion des van der Waals-Potentials sein sollte. Eine Näherung für dieses Potential ist das geometrische Mittel aus den jeweiligen Bindungsenergien der beiden Medien bezogen auf die Anzahl der nächsten Nachbaratome [63]. Die Bindungsenergie E_o für ein Heliumatom ist dann proportional $\sqrt{E_M}$, wobei E_M die Bindungsenergie des Festkörpers ist.

In Abb. 21 ist der mittlere Transmissionskoeffizient in Abhängigkeit von $\sqrt{E_M}$ bei verschiedenen Temperaturen aufgetragen. Neben den eigenen Meßwerten sind bei der Temperatur T = 1,5 K auch andere Ergebnisse herangezogen. Zwei Tendenzen lassen sich aus dem Diagramm entnehmen: der Transmissionskoeffizient nimmt mit zunehmender Bindungsenergie zu, und die Abhängigkeit ist um so größer, je höher die Temperatur ist. Dies führt zu der Hypothese, daß bei Substraten mit starken Anziehungskräften auch Anregungen von relativ schwach adsorbierten Atomen der dritten oder höheren Heliumlage für den Energietransport wirksam werden, während dies bei Substraten mit niedrigeren van der Waals-Kräften nur für die relativ stark gebundenen Atome der zweiten Heliumlage gilt. In qualitativer Übereinstimmung damit stehen die in Abb. 20 angegebenen Δ-Werte (für die nicht eingezeichneten Nickelkurven gilt $\Delta < 2$ K). Untersuchungen der adsorbierten, festeren Heliumschicht an Kristallen mit relativ schwachen Bindungskräften unterstützen diese Modellvorstellung. Sie zeigen nämlich, daß sich bei derartigen Substraten die dritte Heliumlage in ihren Eigenschaften kaum von der Flüssigkeit unterscheidet [62]. Anregungen von Atomen dieser Schicht entfallen daher.

Die in dieser Arbeit beschriebenen Ergebnisse für den Kapitza-Widerstand zwischen polykristallinen Metallen und HeII zeigen noch eine andere als in Abb. 20 dargestellte Abhängigkeit von bestimmten Festkörpereigenschaften, die allerdings in den derzeit bekannten, theoretischen Modellen nicht enthalten ist. Abb. 22 zeigt einen linearen Zusammenhang zwischen dem Kapitza-Widerstand und dem Festkörperparameter c_D / ρ, wobei

$$c_D = c_t \left[\frac{3}{2 + (c_t/c_l)^3} \right]^{1/3}$$

die Debye-Geschwindigkeit des Festkörpers ist. Bei der Temperatur T = 1,2 K sind auch andere experimentelle Ergebnisse eingezeichnet (ausgefüllte Kreise). Allen Ergebnissen gemeinsam ist eine Temperaturabhängigkeit von R_K größer als T^{-3}.

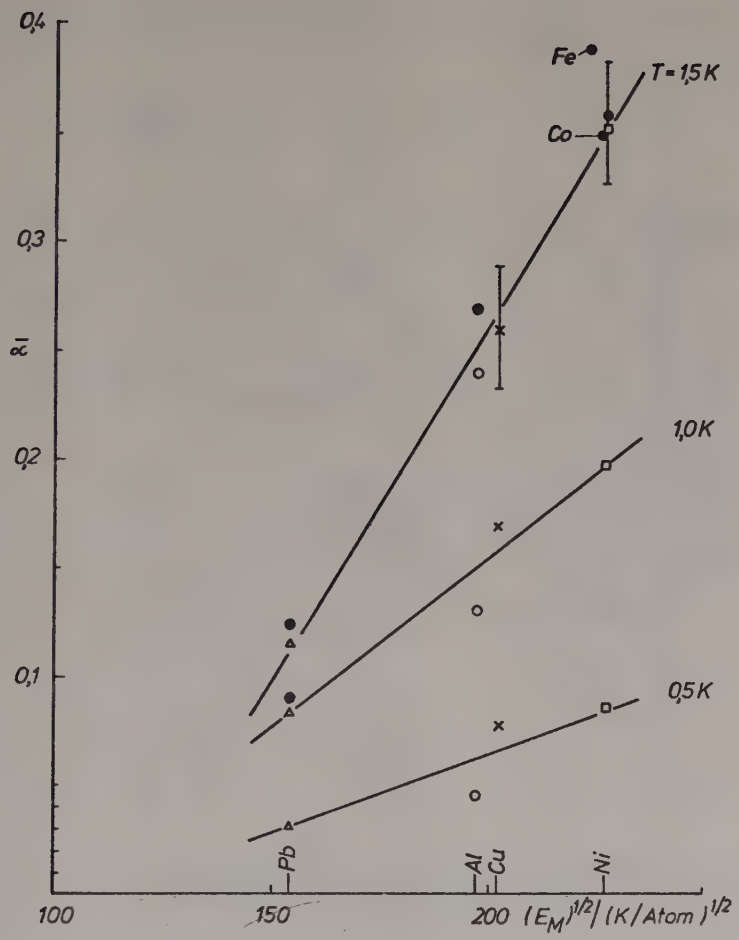


Abb.21 Abhängigkeit des mittleren Transmissionskoeffizienten von der Bindungsenergie des Festkörpers.
(●) = Pb [51], Al [29], Ni,Fe,Co [31].
Andere Symbole = diese Arbeit.

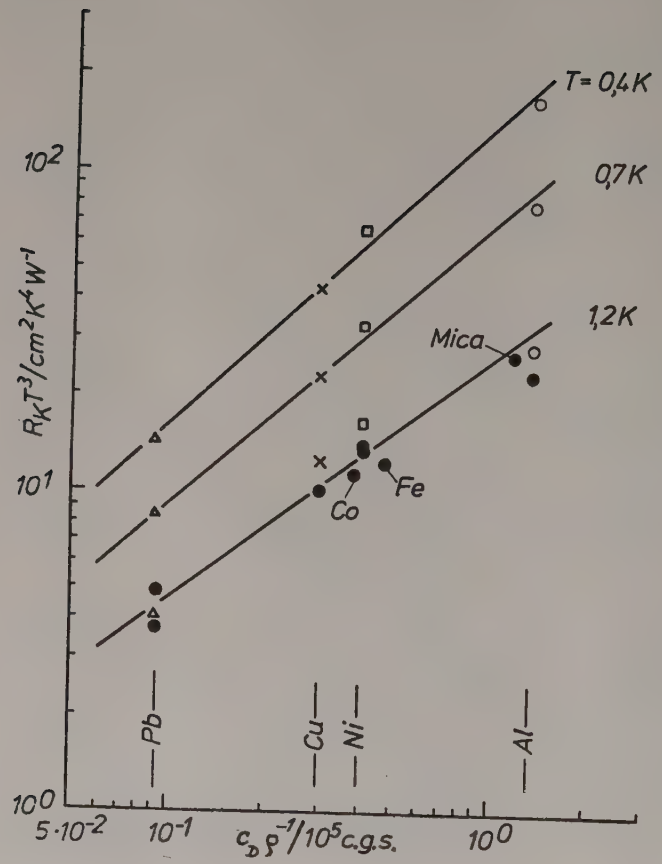


Abb.22 Kapitza-Widerstand als Funktion des Festkörperparameterters c_D/ρ . (●) = Pb [51], Cu [26], Ni, Fe,Co [31], Mica [58], Al [29]. Andere Symbole = diese Arbeit.

Überträgt man diesen Zusammenhang auf den mittleren akustischen Transmissionskoeffizienten, so ergibt sich

$$\bar{\alpha} = \frac{h^{Ex}}{h^{PR}} = \frac{R^{PR}}{R^{Ex}} \approx \frac{c_D^2}{c_{D/\rho}} = c_D \rho ,$$

d. h. $\bar{\alpha}$ ist proportional zur mittleren akustischen Impedanz des Festkörpers. Diese Abhängigkeit läßt sich auch mit Hilfe der Debye-Temperatur θ_D ausdrücken: $\bar{\alpha} \approx M\, \theta_D$, dabei ist M das Molekulargewicht des Festkörpers. Auf die Proportionalität zwischen dem Transmissionskoeffizienten und der Debye-Temperatur für Metalle sowie für Nichtmetalle wurde auch von Challis [64] anhand von Werten für T = 1,9 K hingewiesen.

Während die bisher für vergleichbare Proben bei tiefen Temperaturen gefundenen Werte des Kapitza-Widerstandes erhebliche Streuungen und teilweise Widersprüche aufweisen, wird mit den vorliegenden Messungen bei Temperaturen T = 0,35 ... 1,4 K eine systematische Abhängigkeit von bestimmten Volumeneigenschaften der Festkörper nachgewiesen.

Der untersuchte Temperaturbereich ist ein Übergangsbereich, in dem sich der Kapitza-Widerstand zwischen dem maximalen AM-Grenzwert und dem minimalen PR-Grenzwert verändert. Dieser Übergang läßt sich im Modell nachvollziehen, wenn neben dem Phononenmechanismus nach der AM-Theorie die Energieübertragung durch Anregungsprozesse einzelner Heliumatome der adsorbierten, festeren Heliumschicht als weiterer Mechanismus herangezogen wird. Auch die bislang widersprüchlichen Ergebnisse anderer Autoren lassen sich dann teilweise einordnen.

12 Literaturverzeichnis

1 P.L. Kapitza, J.Phys. U.S.S.R. 4 (1941) 181

2 I.M. Khalatnikov, Zh. Eksp. Teor. Fiz. 22 (1952) 687

3 R.M. Mazo, Ph.D. Thesis, Yale University (1955)

4 R.S. Snyder, Cryogenics 10 (1970) 89

5 G.L. Pollack, Rev. Mod. Phys. 41 (1969) 48

6 L.J. Challis, J.Phys. C, 7 (1974) 481

7 R.E. Peterson, A.C. Anderson, J. Low Temp. Phys. 11 (1973) 639

8 A.C. Anderson, W.L. Johnson, J. Low Temp. Phys. 7 (1972) 1

9 A.R. Long, R.A. Sherlock, A.F.G. Wyatt, J. Low Temp. Phys. 15 (1974) 523

10 I.L. Bekarevic, I.M. Khalatnikov, JETP 12 (1961) 1187

11 J. Gavoret, Phys. Rev. 137 (1965) A 721

12 W.A. Little, Can. J. Phys. 37 (1959) 334

13 G.W. Stewart, R.B. Lindsay, Akustik, Carl Heymanns-Verlag 1934

14 L.J. Challis, J.D.N. Cheeke, Proc.Roy.Soc. A 304 (1968) 479

15 H. Haug, K. Weiss, Phys. Lett. 40 A (1972) 19

16 G.A. Toombs, L.J. Challis, J. Phys. C 4 (1971) 1085

17 R.A. Guyer, J. Low Temp. Phys. 10 (1973) 157

18 O. Avenal, M.P. Berglund, R.G. Gylling, N.E. Phillips, A. Vetleseter, M. Vuorio, Phys. Rev. Lett. 31 (1973) 76

19 D.L. Mills, M.T. Beal-Monod, Phys. Rev. A 10 (1974) 343

20 A. Elsner, G. Klipping, Adv. Cryog. Eng. 14 (1969) 416 Plenum Press New York

21 T.P. Bernat, H.D. Cohen, J. Low Temp. Phys. 14 (1974) 597

22 G.T. McConville, Cryogenics 9 (1969) 122

23 J.S. Blakemore, J. Winstel, R.V. Edwards, Rev. Scient. Instr. 41 (1970) 835

24 S. Dushman, Scientific Foundations of Vacuum Techniques, John Wiley & Sons (1962)

25 W.J. Tegart, The Electrolytic and Chemical Polishing of Metals, London Pergamon Press (1956)

26 A.C. Anderson, J.I. Connolly, J.C. Wheatley, Phys. Rev.135 (1964) A 910

27 G.J. Guo, H.J. Maris, Phys. Rev. A 10 (1974) 960

28 H. Kinder, W. Dietsche, Phys. Rev. Lett. 33 (1974) 578

29 K. Mittag, Cryogenics 13 (1973) 94

30 Kuang Wey-Yen, JETP 15 (1962) 635

31 J.D.N. Cheeke, B. Hebral, J. Richard, J. Low Temp. Phys. 12 (1973) 359

32 T. Frederking, Prom. Nr. 3007, TH Zürich, VDI-Verlag Düsseldorf (1961)

33 D.M. Lee, H.A. Fairbank, Phys. Rev. 116 (1959) 1359

34 A.C. Anderson, J.I. Conolly, O.E. Vilches, J.C. Wheatley, Phys. Rev. 147 (1966) 86

35 B.W. Clement, T.H.K. Frederking, Proc.Intern.Inst.Refrig. Commission II, Boulder, Colo (1966) 49, Pergamon Press, Oxf.

36 R.W.Whitworth, Proc. Roy. Soc. (London) A 246 (1958) 390

37 H.B.G. Casimir, Physica 5 (1938) 495

38 Y. Eckstein, J. Landau, R.L. Rosenbaum, J. Low Temp. Phys. 12 (1973) 589

39 H.M. Rosenberg, Phil. Trans.Roy.Soc. 247 (1955) 441

40 W. Reese, W.A. Steyert, Rev. Scient. Instr. 33 (1962) 43

41 C.B. Satterthwaite, Phys. Rev. 125 (1962) 873

42 H. Montgomery, Proc. Roy. Soc. A 244 (1958) 85

43 J.T. Folinsbee, A.C.Anderson, J. Low Temp. Phys. 17 (1974) 409

44 K.N. Zinov'eva, JETP 33 (1971) 1205

45 E.A. Jones, J.C.A. van der Sluijs, Cryogenics 13 (1973) 535

46 H.A. Fairbank, J. Wilks, Proc.Roy.Soc. A 231 (1955) 545

47 J.P. Laheurte, F.D. Mancester, Cryogenics 12 (1972) 362

48 L.J. Challis, Proc.Phys.Soc. 80 (1962) 759

49 W.L. Johnson, A.C. Anderson, Phys.Lett. 37 A (1971) 101

50 A.E. Alnaimi, J.C.A. van der Sluis, Cryogenics 13 (1973) 722

51 L.J. Challis, J.D.N. Cheeke, Prog. Refrig. Sci. 1 (1965) 227

52 J.D.N. Cheeke, Cryogenics 10 (1970) 463

53 L.J. Challis, R.A. Sherlock, J.Phys. C, 3 (1970) 1193

54 I.N. Adamenko, I.M. Fuks, JETP 32 (1971) 1123

55 B.S. Semwal, P.K. Sharma, Can. J. Phys. 60 (1972) 2712

56 O.L. Anderson, Physical Acoustics III B (1965) 43

57 R.H. Sherman, S.G. Sydoriak, T.R. Roberts, J. Res. NBS 68 A (1964) 579

58 F. Wagner, M. Yaqub, Phys. Lett. 53 A (1975) 281

59 L.J. Challis, K. Dransfeld, J. Wilks, Proc.Roy.Soc. A 260 (1961) 31

60 A.R. Long, J. Low Temp. Phys. 17 (1974) 7

61 E.S. Sabisky, C.H. Anderson, Solid State Comm. 17 (1975) 1095

62 A. Evenson, D. F. Brewer, A.J. Symonds, A.L. Thomson, Phys. Lett. 33 A (1970) 35

63 R.N. Lichtenthaler, K. Schäfer, Ber. Bunsenges. physik. Chem. 73 (1969) 42

64 L.J. Challis, Phys. Lett. 26 A (1968) 105

65 H.-D. Denner, G. Klipping, wird veröffentlicht in Proc. ICEC 6, Grenoble, 1976

Die vorliegende Arbeit wurde im Tieftemperaturlaboratorium am Fritz-Haber-Institut der Max-Planck-Gesellschaft durchgeführt.

Für zahlreiche Anregungen, Hinweise und Diskussionen zu dieser Arbeit danke ich Herrn Priv.-Doz. Dr.-Ing. G. Klipping, Herrn Prof. Dr. E. Klein, Herrn Dr. J. Prusak und Frau Dr.-Ing. I. Klipping. Den Mitarbeitern des Tieftemperaturlabors danke ich für ihre kollegiale Unterstützung und Diskussionsbereitschaft.

L e b e n s l a u f

Name:	**Hans-Dietrich Denner**
geboren am:	27. 8. 1943
in:	**Berlin**
Eltern:	**Dr. Josef Denner und Ehefrau Stefanie, geb. Nordmann**

Schulen:

1949 - 1955	Grundschule in Berlin-49
1955 - 1962	Ulrich-von-Hutten Gymnasium, math. naturwiss. Zweig

Berufsausbildung:

1962 - 1969	Studium an der Freien Universität Berlin in den Fächern Physik und Mathematik

Prüfungen:

1962	Abitur
1965	Diplom-Vorprüfung
1969	Diplom-Hauptprüfung

Die Diplomarbeit fertigte ich im Tieftemperaturlabor des Fritz-Haber-Institutes der Max-Planck-Gesellschaft in Berlin an. Seit 1970 bin ich dort als wissenschaftlicher Mitarbeiter tätig. In dieser Zeit entstand auch die vorliegende Dissertation.

F. Höpfner - Dissertationsdruck - 1 Berlin 12 - Pestalozzistraße 106
Tel.: 3128885 - 3138198